SÉRIE A, N° 3702
N° D'ORDRE : 4553

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

GENEVIÈVE BASTIN - SCOFFIER

1re THÈSE. — "Exposé de méthodes en spectrographie α. Application aux corps de la famille du Radium naturel".

2e THÈSE. — Propositions données par la Faculté.

Soutenues le Mai 1961 devant la Commission d'examen.

M. TEILLAC — *Président.*
Mme BENOIST
M. HAISSINSKY
M. WALEN — *Examinateurs.*

SÉRIE A, N° 3702
N° D'ORDRE : 4553

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

GENEVIÈVE BASTIN - SCOFFIER

1re THÈSE. — "Exposé de méthodes en spectrographie α. Application aux corps de la famille du Radium naturel".

2e THÈSE. — Propositions données par la Faculté.

Soutenues le Mai 1961 devant la Commission d'examen.

M. TEILLAC — *Président.*
Mme BENOIST
M. HAISSINSKY
M. WALEN — *Examinateurs.*

FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE PARIS

- PROFESSEURS -

Doyen J. PERES

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure
DE BROGLIE	T	Théories physiques
PRENANT	T	Anatomie et Histologie comparées
PERES	T	Mécanique des fluides et applications
BOURCART	T	Géographie physique et Géologie dynamique
PLANTEFOL	T	Botanique
GRASSE	T	Evolution des êtres organisés
PREVOST	T	Chimie organique
BOULIGAND	T	Analyse appliquée à la Géométrie
CHAUDRON	T	Chimie appliquée
WYART	T	Minéralogie et Cristallogr.
TEISSIER	T	Zoologie
MANGENOT	T	Biologie Vég. (ORSAY)
AUGER	T	Physique quantique et Relativité
MONNIER	T	Physiologie des Fonctions
PIVETEAU	T	Paléontologie
ROCARD	T	Physique (E.N.S.)
CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.)
LAFFITTE	T	Chimie Générale
FAVARD	T	Géométrie supérieure
COULOMB	T	Physique du Globe
Mle COUSIN	T	Biologie
CHRETIEN	T	Chimie minérale
DRACH	T	Zoologie
KASTLER	T	Physique (E.N.S.)
EPHRUSSI	T	Génétique
RIVIERE	T	Géologie (ORSAY)
GAUTHERET	T	Biologie (P.C.B.)
LUCAS R.	T	Recherches Physiques
THOMAS A.	T	Biologie cellulaire
ARNULF	T	Optique appliquée
MORAND	T	Physique enseignement
SOLEILLET	T	Physique (P.C.B.)
FORTIER	T	Mécan. expérim. des fluides
DANJON	T	Astronomie
PETIT	T	Biologie maritime
QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique
GALLIEN	T	Embryologie
EICHHORN	T	Biologie Végétale (P.C.B.)
DE CUGNAC	T	Biologie Végétale (S.P.C.N.)
Mle CAUCHOIS	T	Chimie Physique
THELLIER	T	Physique du Globe
L'HERITIER	T	Biologie Végétale (ORSAY)
GRIVET	T	Radioélectricité (ORSAY)
PONCIN	T	Mécanique Générale
DUBREIL	T	Arithmétique et Théorie des Nombres
QUELET	T	Chimie organique
CAGNIARD	T	Géophysique appliquée
CHAMPETIER	T	Chimie Macromoléculaire
CUVILLIER	T	Micropaléontologie
JUNG	T	Pétrographie
TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique
WIEMANN	T	Chimie organique et Struct.
JACQUINOT	T	Spectroscopie (ORSAY)
VASSY	T	Physique de l'Atmosphère
DESTOUCHES	T	Théories Physiques
PRUVOST	T	Géologie
AMIEL	T	Chimie des Solides
HOCART	T	Minéralogie et Cristallogr.
J.P. MATHIEU	T	Recherches Physiques
COUTEAUX	T	Biologie Animale (P.C.B.)
MAY	T	Zoologie (ORSAY)
CHOQUET	T	Théorie des fonctions et Topologie
FELDMANN	T	Biologie Végétale (P.C.B.)
GUINIER	T	Physique des Solides (ORSAY)
JOST	T	Physiologie comparée
FORTET	T	Calcul des Probabilités
SCHWARTZ	T	Calcul diff. et Intégral
CHOUARD	T	Physiologie Végétale
MALAVARD	T	Aviation (Techn. Aéronaut.)
BRELOT	T	Calcul différentiel
NORMANT	T	Synthèse organique générale
BENARD	T	Chimie (E.N.S.C.P.)
BUVAT	T	Botanique (E.N.S.)
DUGUE	T	Statistiques Mathématiques
SOULAIRAC	T	Psychophysiologie
ULRICH	T	Physiologie Végétale (E.N.S.)
MARECHAL	T	Optique théorique et Appl.
KIRRMANN	T	Théories Chimiques

CHADEFAUD	T	Botanique
Mle LE BRETON	T	Physiologie
SALEM	T	Mathématiques Générales
LELONG	T	Mathématiques Générales
DEVILLERS	T	Anatomie et Histologie comparées
EHRESMANN	T	Topologie Algébrique
FRANÇON	T	Physique (S.P.C.N.)
GLANGEAUD	T	Géographie physique et Géologie dynamique
GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.)
PISOT	T	Calcul des Probabilités
ROCH	T	Géologie
SCHATZMAN	T	Astrophysique
TERMIER	T	Paléontologie Stratigraphique
ZAMANSKY	T	Mathématiques Générales
LENNUIER	T	Physique (P.C.B.)
RIZET	T	Génétique (ORSAY)
ROUTHIER	T	Géologie appliquée
Mme TONNELAT	T	Relativité
DIXMIER	T	Mathématiques (M.P.C.)
SOUCHAY	T	Chimie (P.C.B.)
AIGRAIN	T	Electronqiue générale
BRUSSET		Chimie minérale
M. LEVY	T	Physique théorique des hautes énergies (ORSAY)
Mme CHAIX	T	Chimie biologique
Mme HUREL-PY	T	Biologie Végétale (P.C.B.)
PIAUX	T	Chimie (S.P.C.N.)
BRUN	T	Mécan. expérimentale des fluides
LEDERER	T	Chimie biologique
Mme DUBREIL	T	Mathématiques (Agreg.)
Mme LELONG	T	Mathématiques (E.N.S.)
BELLAIR	T	Géologie (S.P.C.N.)
COTTE	T	Physique (M.P.C.)
DUBOIS J.E.	T	Chimie (M.P.C.)
LAMOTTE	T	Zoologie (E.N.S.)
MICHEL André	T	Chimie minérale (ORSAY)
OLMER	T	Energétique générale
ROUAULT	T	Physique
GAUTHIER	T	Mécanique appliquée
BARCHEWITZ	T	Chimie Physique
BROSSEL	T	Physique atomique
BUSER		Biologie animale (P.C.B.)
CAMUS		Biologie végétale (P.C.B.)
CASTAING	T	Physique (ORSAY)
CURIEN	T	Minéralogie et Cristallogr.
MOYSE	T	Physiologie végét. (ORSAY)
PANNETIER	T	Chimie (ORSAY)
POSSOMPES	T	Biologie animale (P.C.B.)
PULLMANN		Chimie théorique
TEILLAC	T	Physique Nucléaire et Radioactivité (ORSAY)
TONNELAT		Biologie physico-chim.
VILLE	T	Econométrie
WILLEMART		Chimie (P.C.B.)
DODE	T	Chimie (ORSAY)
FREYMANN	T	Physique (S.P.C.N.)
GUINOCHET	T	Biologie Vég. (ORSAY)
ROLLET	T	Chimie (P.C.B.)
Mle JOSIEN	T	Chimie (P.C.B.)
CHEVALLEY	T	Géométrie algébrique et Théorie des groupes
ARNOULT	T	Electronique (ORSAY)
CHAPELLE	T	Physique (ORSAY)
DELANGE	T	Mathématiques (ORSAY)
DENY	T	Mathématiques Générales (ORSAY)
GERMAIN	T	Mécanique théorique des fluides
LUCAS G.	T	Géologie
ALLARD	T	Chimie Physique
BERTHELOT	T	Physique Fondamentale des Hautes Energies (ORSAY)
BRICARD	T	Météorologie
Mme ALBE-FESSARD		Psychophysiologie
FRIEDEL		Physique des Solides (ORSAY)
M. JULIA		Chimie Organ. Structurale
LENDER		Biologie An. (SPCN) (ORSAY)
MAGAT		Physico-chimie des rayonnements
Mle QUINTIN	T	Electrochimie
MONOD	T	Biochimie cellulaire
BENOIT	T	Physiol. Anim. (ORSAY)
DE POSSEL	T	Analyse numérique
CHARLOT	T	Chimie analytique
HAISSINSKY	T	Radiochimie
LEMEE	T	Physiol. B.M.P.V. (ORSAY)
GUERIN	T	Chimie (ORSAY)
CHATELET M.		Chimie (P.C.B.)
JEAN		Physique (ORSAY)
MATTLER	T	Physique (ORSAY)
MICHEL Louis		Physique théor. (ORSAY)
RUMPF		Chimie (P.C.B.)
BERGERARD		Biol. Anim. (SPCN) (ORSAY)
BERTEIN		Electronique (ORSAY)
BOUISSIERES		Chimie des radioéléments (ORSAY)
Mme COUTURE		Thermodynamique et Mécanique Physique
ELLENBERGER		Géologie appliquée
FRANC		Biol. Animale (P.C.B.)
SCHNELL		Botanique tropicale (ORSAY)
STOLKOWSKI		Biol. Animale (P.C.B.)
ACHER		Chimie Biol. (ORSAY)
BAUDOIN		Biologie

BAUDOIN		Biologie	BARRAUD		Physiologie Générale
BEAUMONT		Biologie Animale	NOIROT		Evolution des êtres organisés
BLAMONT		Géophysique Ionosphère			
BOURREAU		Biologie Végétale (S.P.C.N.) (ORSAY)	Mme FOURES-BRUHAT	T	Mécanique Analytique e Mécanique Céleste
CURIE D.		Physique (M.G.P.)	Mle VEIL		Physiologie Générale
DURAND-DELGA		Géologie	LWOFF	T	Microbiologie
FREON		Chimie organique (ORSAY)	SIESTRUNCK	T	Mécanique Physique et Expérimentale
HELLER		Physiologie Végétale			
TORTRAT		Calcul des Probabilités	LACOMBE	T	Métallurgie (ORSAY)
CAILLEUX		Géologie (S.P.C.N.)	BROCHARD	T	Physique P.C.B. (ORSAY
MAGNAN	T	Physique (P.C.B.)	CABANNES	T	Mécanique Générale
DAUDEL		Mécanique Ondulatoire appliquée à la chimie théorique et à la physique nucléaire.	LESIEUR	T	Mathématiques M.P.C. (ORSAY)
			MAZET	T	Mécanique Générale (ORSAY)
Mle FOURCROY		Biologie Végétale (S.P.C.N.)			

SECRETAIRE GENERAL ..... R. POULLAIN

R. UNIV
BIBLIOTHEEK
LEIDEN

EXPOSE DE METHODES EN SPECTROGRAPHIE ALPHA

- APPLICATION AUX CORPS DE LA FAMILLE DU RADIUM NATUREL -

INTRODUCTION

PREMIERE PARTIE - DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

I Champ magnétique 5

II Dispositif expérimental classique 1946-1956

II.1 Spectrographe 7

II.1.1 Description
II.1.2 Largeur des raies

II.2 Sources 13

II.2.1 Sources préparées par activation directe
II.2.2 Sources préparées par dépôt
II.2.3 Sources obtenues par électrolyse ou dépôt spontané
II.2.4 Sources obtenues par volatilisation
II.2.5 Supports de sources

II.3 Caractéristiques des spectres obtenus 16

III Modifications apportées au dispositif existant et aux méthodes

III.1 Etude des facteurs intervenant pour le fond continu 22

III.1.1 Diffusion
III.1.2 Perte de matière par la source
III.1.3 Pénétration de la matière active dans son support

III.2 Choix du support 28

III.2.1 Technique de préparation des feuilles
III.2.2 Evaluation de l'épaisseur d'une feuille
III.2.3 Limitation d'intensité pour le support choisi

III.3 Préparation des sources 33

III.3.1 Généralités sur la volatilisation
III.3.2 Préparation du creuset
III.3.3 Aménagement de l'évaporateur
III.3.4 Mécanisme de fixation sur la feuille

III.4 Précautions générales 41

III.4.1 Elimination des poussières
III.4.2 Contrôle des récipients et des réactifs
III.4.3 Mise en route et arrêt des poses

III.5 Deuxième dispositif spectrographique 42

III.6 Analyse des spectres obtenus 47

III.6.1 Détermination des énergies
III.6.2 Détermination des intensités

III.7 Développement et dépouillement des plaques 51

DEUXIEME PARTIE - RESULTATS EXPERIMENTAUX

I Etude du Radium et de ses descendants à vie courte

I.1 Partie expérimentale 53

I.1.1 Préparation de la source
I.1.2 Résultats
I.1.3 Interprétation
I.1.4 Echelle des énergies

I.2 Interprétation des résultats : ^{226}Ra 56

I.2.1 Historique
I.2.2 Résultats
I.2.3 Interprétation
I.2.4 Discussion

I.3 ^{222}Rn 62

I.4 ^{218}At 62

I.5 ^{218}Po (Ra A) 65

I.6 ^{214}Po (Ra C') 66

I.7 Conclusions

II Etude de ^{210}Po 67

II.1 Historique

II.2 Préparation de la source

II.3 Résultats et interprétation

III Etude de ^{210}Bi (Ra E) 70

III.1 Etudes antérieures

III.2 Préparation de la source

III.2.1 Purifications chimiques
III.2.2 Electrolyse et distillation

III.3 Poses et résultats

III.3.1 Evaluation des énergies
III.3.2 Intensités

IV Etude de ^{214}Bi (Ra C) 78

IV.1 Résultats antérieurs

IV.2 Préparation de la source

IV.3 Poses et résultats

IV.3.1 Détermination des énergies
IV.3.2 Intensité
IV.3.3 Résultats

V Discussion de certains résultats 85

V.1 Tableau récapitulatif

V.2 Facteurs d'empêchement

V.2.1 Radium
V.2.2 Polonium
V.2.3 Bismuth

V.3 Propositions de spins et de schémas

V.3.1 Proposition de spins pour ^{210} Bi
V.3.2 Schéma de ^{210} Bi
V.3.3 Schéma de ^{214} Bi

CONCLUSION 103

BIBLIOGRAPHIE 105

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41538123_0030

EXPOSE DE METHODES EN SPECTROGRAPHIE ALPHA

- APPLICATION AUX CORPS DE LA FAMILLE DU RADIUM NATUREL -

INTRODUCTION

La structure fine dans les spectres des corps émetteurs alpha a été mise en évidence en 1929 par S. Rosenblum sur le dépôt actif du Thorium (R1). C'était l'époque où l'on considérait que chaque noyau pouvait émettre au plus un rayonnement alpha d'énergie donnée, époque où l'idée même de niveaux nucléaires était à l'état de discussion. Cette première structure fine démontrait sans ambiguité l'existence d'états excités du noyau, existence aussitôt confirmée par la relation entre l'énergie des rayons γ nucléaires et les intervalles énergétiques entre les différentes raies alpha. La spectrographie α est restée depuis cette date, avec les spectrographies β et γ, un instrument de recherche des niveaux nucléaires excités.

La multiplication des émetteurs alpha dans les séries radioactives artificielles et les transuraniens, et l'étude plus approfondie des émetteurs alpha naturels ont permis, au cours des vingt dernières années, une accumulation de résultats expérimentaux. Parallèlement, et pour les expliquer, des théories se développaient pour les noyaux lourds, théorie du modèle en couches permettant l'interprétation du niveau fondamental et des premiers niveaux excités ainsi que des discontinuités dans les propriétés nucléaires au voisinage des couches fermées, théorie du modèle unifié sous son aspect particulaire ou collectif expliquant les niveaux d'excitation plus élevés, niveaux de rotation ou de vibration des noyaux déformés, en dehors des couches fermées. L'exploitation des théories amenant tout naturellement à la prédiction des schémas nucléaires, la spectrographie alpha dont les résultats définissent sans équivoque des positions de niveaux, était appelée, en se perfectionnant,

à conserver un rôle important.

Je ferai tout d'abord dans une première partie une description des méthodes couramment utilisées au laboratoire pour la spectrographie magnétique des rayonnements alpha ; puis l'exposé des modifications apportées aux dispositifs existants et aux méthodes en vue d'atteindre les niveaux d'excitation plus élevée.

Dans une deuxième partie seront décrits les résultats expérimentaux obtenus pour les émetteurs alpha de la famille du Radium et suggérées leurs interprétations possibles.

Toutes les expériences exposées ici ont été faites au Laboratoire de l'Aimant-Permanent du C.N.R.S. créé et dirigé jusqu'en 1959 par Monsieur Salomon Rosenblum. Je salue avec émotion et respect la mémoire de celui qui fut l'animateur et le stimulant de ce travail. Ses conseils et ses exigences de rigueur scientifique, sa foi et son élan m'ont beaucoup aidée à le mener à bien.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Monsieur Valadarès, Directeur du Laboratoire depuis 1959, qui m'a constamment encouragée et qui m'a donné toutes les facilités matérielles pour l'achèvement de cette thèse.

Les expériences ici décrites ont été réalisées sous la direction, et avec l'aide et les conseils de Monsieur Walen. Je tiens à lui exprimer ma très vive gratitude.

Madame Seige, Mademoiselle Lorgeril, et tout le personnel du Laboratoire m'ont aidée avec beaucoup de camaraderie et de dévouement. Je les remercie tous.

Le Centre National de la Recherche Scientifique et le Commissariat à l'Energie Atomique, ont permis la réalisation de cette thèse grâce à l'allocation et aux moyens de travail qu'ils ont mis à ma disposition.

PREMIERE PARTIE - DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

I Champ magnétique.

Le Grand Aimant-Permanent fut réalisé dans les laboratoires de Bellevue par Aimé Cotton, à la suite du projet et des essais sur maquette au 1/4 de S. Rosenblum et Tsaï (R2). C'était alors le plus grand du monde, capable de donner des champs supérieurs à 10 000 gauss entre les pôles de grande surface et pour des entrefers de quelques centimètres.

Les noyaux magnétiques cylindriques de 1 m 20 de diamètre et 760 mm de long sont prolongés par des pièces polaires tronconiques qui concentrent le flux magnétique dans un entrefer de 440 x 780 mm^2 de section. Une particularité essentielle de cet appareil est qu'il fut conçu pour avoir un entrefer réglable, de dimension maximum 220 mm, le noyau polaire supérieur étant rendu mobile par un système de vérins à commande électrique. Deux grands anneaux en acier doux assurent la fermeture du circuit magnétique et permettent ainsi un accès aisé de l'entrefer ce qui facilite les nettoyages et retouches mécaniques possibles sans démontage de l'appareil. Les pièces polaires sont utilisées comme parois de la boîte à vide du spectrographe.

L'enroulement d'excitation autour des barreaux en acier au nickel-aluminium produit l'aimantation. Une exploration systématique du champ à l'aide du dispositif bobine-fluxmètre a montré que les variations de champ ne dépassaient pas 0,3 à 0,4 pour mille (R3). L'aimant était à Bellevue dans une enceinte isolée thermiquement par de la laine de verre. Toutefois la constance de température ne pouvait être assurée sur de longues périodes et dans le cas de poses prolongées (pose du Radium commencée en hiver et terminée les premiers jours de Mai), un élargissement des raies était inévitable, dû à l'influence de l'échauffement ou du refroidissement de la masse sur le champ magnétique

$$\frac{1}{H}\frac{dH}{dT} = -1{,}85 \cdot 10^{-4} \text{ par degré}$$

La courbe d'aimantation en fonction du courant a pu être établie à l'aide de particules alpha de vitesse, donc de HR connu. Cette méthode a l'avantage de ne rien modifier

aux conditions expérimentales, puisque l'instrument de mesure du champ est le spectrographe lui-même. Dans un entrefer de 15 mm, l'aimantation par un courant de 3 000 A (courant maximum fourni par les génératrices de Bellevue) sous une tension de 300 V, fournit un champ tel que :

$$H_{3000} = H_{saturation} \times 0,995$$

Pour les noyaux lourds émetteurs α, si l'on ne tient pas compte des longs parcours, les énergies se situent entre 4 et 9 MeV. Les HR correspondants, se répartissent entre 290 000 et 430 000 gauss.cm. Les dimensions des pièces polaires, et la courbe des champs en fonction de l'entrefer, amènent à fixer celui-ci à 15 mm pour la spectrographie des éléments lourds. La limite inférieure d'énergies mesurables dépend du système de focalisation utilisé. Pour la méthode à 180°, que nous allons décrire ci-après, cette limite est en principe aussi basse qu'on le veut. Mais la précision de lecture est meilleure pour un grand rayon de courbure, ce qui amène pour des énergies très faibles à diminuer H plutôt que R. La diminution de H pourrait être obtenue par augmentation de l'entrefer. Mais cela exigerait la construction d'un nouveau spectrographe. En pratique donc, on se contente de diminuer l'aimantation des aimants permanents.

Dans le deuxième type de spectrographe décrit ensuite (W1) le domaine de vitesses couvert est limité des deux côtés par l'apparition d'aberrations pour des HR trop écartés du HR moyen pour lequel l'appareil est prévu. Pour fixer les ordres de grandeur, ce dispositif spectrographique ne couvre qu'une gamme s'étendant à 7 % environ en HR, des deux côtés du rayon de courbure central pour lequel l'aberration devient nulle. Dans ce cas donc, on peut modifier le champ de l'appareil pour chaque expérience, de façon à faire coïncider la partie intéressante du spectre avec la zone entourant ce rayon central.

Le dispositif à aimants permanents permet de prévoir des poses aussi longues qu'il est nécessaire pour obtenir une densité de traces voulue à partir d'une source d'intensité donnée et permet, d'autre part, la reproductibilité d'expériences courtes. En pra-

tique, l'appareil une fois aimanté reste en service pour une longue série d'expériences, la désaimantation n'intervenant qu'à la suite de contaminations dûes aux sources ou à la fixation sur les pôles de poussières aimantables présentes inévitablement dans l'air. Néanmoins, les expériences décrites par la suite ont été faites à partir de la même aimantation initiale, ce qui a permis d'utiliser une échelle d'énergie unique.

II Dispositif expérimental classique 1946-1956.

II.1 Spectrographe.

II.1.1 Description

Les deux pièces polaires de l'Aimant sont utilisées comme faces de la boîte à vide du spectrographe, un cadre en laiton rectangulaire fermant la chambre. Une ouverture latérale permet d'introduire, guidée par un rail qui assure des conditions géométriques définies, la tige rigide porte-source, porte-plaques. Une fente de définition réglable centrée sur la source et à faible distance de celle-ci limite radialement le faisceau. Les particules alpha après une trajectoire circulaire sont enregistrées individuellement dans une ou des plaques nucléaires dont la position est fixe et liée à la tige. Les plaques sont inclinées de 60° $\sim$ par rapport au plan des fentes si bien que les particules sont enregistrées comme des bâtonnets parallèles dont la longueur est une fonction simple de la vitesse (parcours dans la gélatine environ proportionnel à v^3).

On déduit la valeur de R de la mesure sous microscope de la distance des raies à un trait marqué sur la plaque par une lame de rasoir guidée par un repère fixe sur la tige. La distance de ce repère au plan médian des fentes pouvait être connue grâce à un instrument de mesure de métrologie existant à Bellevue, avec une précision relative de 10^{-4}.

Enfin un volet à l'intérieur du spectrographe intercepte le faisceau des particules tant qu'un vide de 10^{-5} mm Hg n'est pas atteint, vide assuré par un système de pompage fonctionnant durant toute la durée des expériences.

La figure 1 donne le schéma du spectrographe.

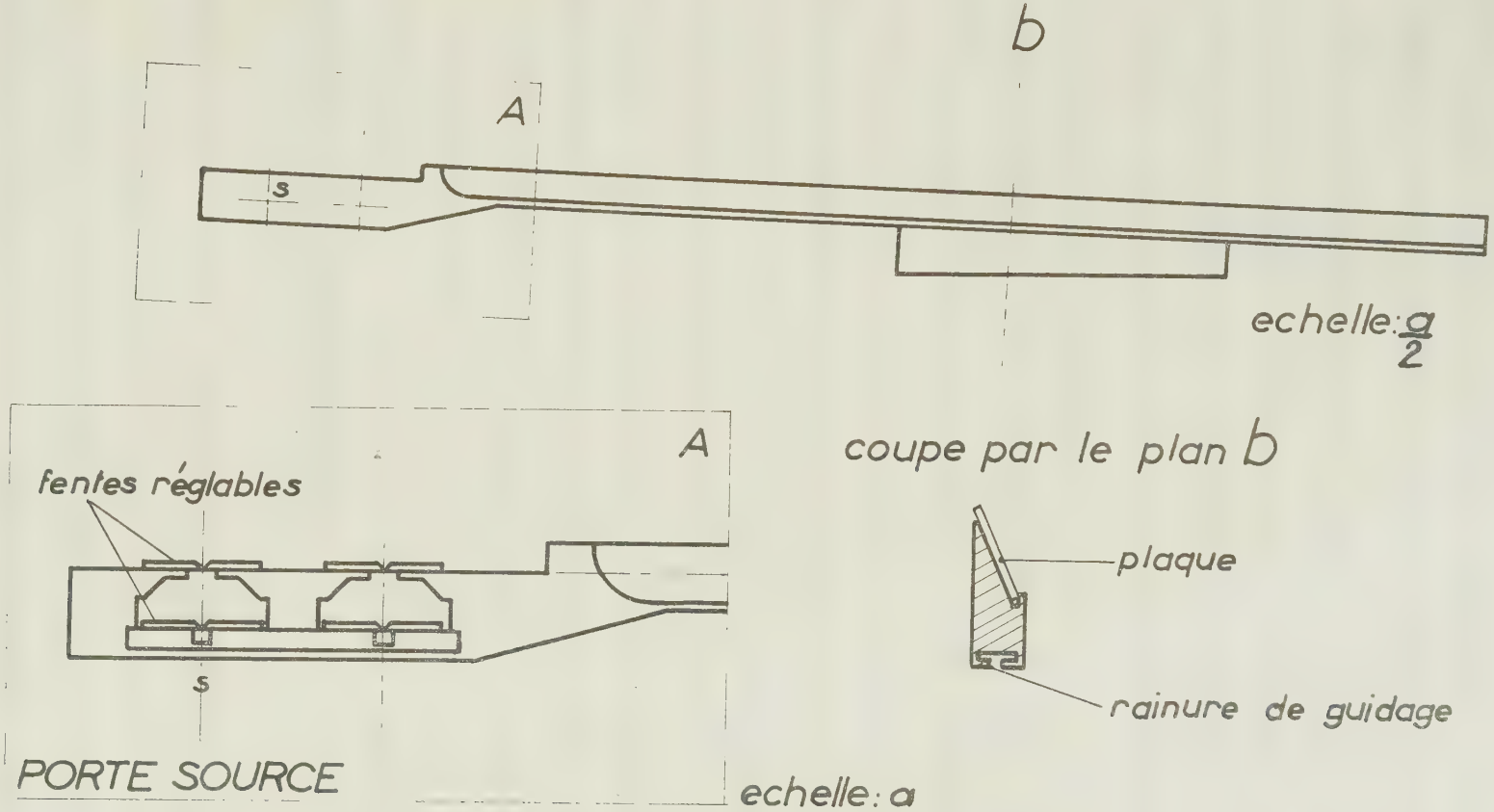


Fig. 1 Spectrographe a 4cm

II.1.2 Largeur des raies

La forme de la raie obtenue sur une plaque inclinée résulte d'un calcul compliqué. Une étude détaillée du problème a été faite au laboratoire par E. Cotton (C2). Nous nous bornerons à une évaluation numérique de la largeur totale de la raie en partant d'une source linéaire et en nous plaçant dans un plan parallèle aux pièces polaires. La plaque est inclinée par rapport à ce plan de 30° environ et sa projection sur le plan est limitée par deux droites L_1 et L_2 parallèles à l'axe des abscisses.

Soient :

S la source considérée comme ponctuelle,

h la distance entre la source et la fente de 1/2 largeur f,

2φ l'angle $\widehat{F_1 S F_2}$.

Nous raisonnerons dans le plan de la figure 2.

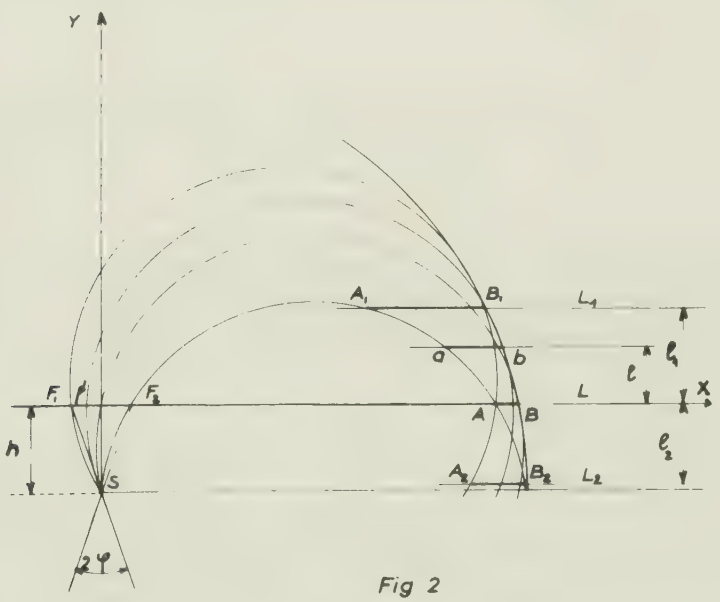


Fig 2

A partir d'un faisceau monocinétique chaque particule a dans ce plan une trajectoire circulaire de même rayon R, l'enveloppe de toutes ces trajectoires étant constituée par le cercle de centre S et de rayon 2 R. L'intersection du cercle enveloppe, avec les parallèles à l'axe des X, représente l'extrémité des raies, côté grandes énergies. Soit B ce point

sur la ligne des fentes L. Les deux trajectoires extrêmes passant par les points F_1 et F_2 se rencontrent en un point A de cette ligne et A B représente la largeur de raie sur L.

Cette largeur A B(sur L)= $R\varphi^2$ ou $R\ \frac{f^2}{h^2}$ en assimilant φ à t g φ ce qui est valable dans les conditions habituelles.

Sur une ligne parallèle à l'axe des abscisses située au dessus de la ligne des fentes le point "b" sera l'intersection avec cette ligne du cercle de centre S rayon 2 R tandis que le point "a" limitant la raie du côté des faibles énergies correspondra à la trajectoire passant par le point F_2.

Au contraire, pour une ligne située en dessous de la ligne des fentes, le point "a" correspondra à la trajectoire passant par le point F_1.

On voit donc que la forme de raie varie tout au long de la plaque.

Pour faire une étude très simplifiée de cette variation, évaluons "a b" sur une droite située à une distance ℓ de L.

La trajectoire correspondant au point "b" traverse la fente en un point f' d'abscisse $x_{f'} = -\frac{h\ell}{2R}$.

La queue de ligne définie par "a" correspond alors à une trajectoire passant par le point F_2 bord de la fente opposé à f' par rapport à l'axe des ordonnées.

On se place dans le cas usuel où $x_{f'} < f$

pour $y = \ell$; la largeur de raie sera $R\varphi^2(\ell)$, $\varphi(\ell)$ étant l'angle $\widehat{F_2 S f'}$. Cet angle est égal à : $\frac{f}{h} + \frac{\ell}{2R}$ (en l'assimilant à sa tangente ce qui est valable dans les conditions habituelles expérimentales),

et à : $\frac{-\ell}{2R} + \frac{f}{h}$ si ℓ est négatif.

En développant au 1er ordre φ pris en valeur absolue : $\left(\frac{|\ell|}{2R} + \frac{f}{h}\right)$, on obtient la largeur de raie : $\Delta x = R\ \frac{f^2}{h^2} + \frac{\ell^2}{4R} + \frac{|\ell| f}{h}$.

$R \frac{f^2}{h^2}$ étant la largeur de raie sur la ligne focale, on voit que l'inclinaison de la plaque entraîne sur toute la plaque une largeur de raie plus grande.

Le dépouillement se faisant par bandes perpendiculaires à l'axe des X sur la figure, on aura, dans les conditions de la figure, le point B_2 comme tête de ligne et comme queue le point A_1 d'abscisse $x_{B_1} - \Delta x_1$, si Δx_1 est la largeur de raie correspondant à ℓ_1.

L'abscisse du point B_2, x_{B_2}, est donnée par :

$$x_{B_2}^2 = 4R^2 - (h - \ell_2)^2 = 4R^2 \left[1 - \frac{(h-\ell_2)^2}{4R^2}\right]$$

ou en première approximation :

$$x_{B_2} = 2R - \frac{(h-\ell_2)^2}{4R}$$

Si l'on prend le cas usuel où $\ell_1 = \ell_2 = \frac{L}{2}$ (si L est la largeur de la plaque) on a comme largeur de raie :

$$\lambda = x_{B_2} - x_{B_1} + \Delta x_1$$

soit : $$\lambda = \frac{L^2}{16R} + \frac{L}{2}\left[\frac{h}{R} + \frac{f}{h}\right] + R\frac{f^2}{h^2}$$

On pourrait obtenir un élargissement moindre en ramenant A_1 à une abscisse égale à celle de A_2. Ceci suppose une disposition de la plaque dissymétrique par rapport au plan des fentes.

Ceci revient à poser :

$$x_{B_2} - \Delta x_2 = x_{B_1} - \Delta x_1$$

ce qui donne une fois résolu la condition :

$$\ell_2 - \ell_1 = \frac{L\,h}{\frac{2Rf}{h} + L}$$

L étant la largeur de la plaque

ou en fonction de L :

$$\ell_2 = \frac{L}{2}\left[1 - \frac{h^2}{2Rf + Lh}\right]$$

et

$$\ell_1 = \frac{L}{2}\left[1 + \frac{h^2}{2Rf + Lh}\right]$$

par exemple :

R = 255 mm

h = 15 mm

f = 0,75 mm

L = 15 mm

(projection d'une plaque de 18 mm, inclinée de 60° par rapport au plan focal)

$R\frac{f^2}{h^2}$ = 0,64 mm = λ_o

avec $\ell_1 = \ell_2$ = 7,5 mm $\longrightarrow$ λ = 1,58 mm

avec $\begin{cases} \ell_2 = 4{,}7 \text{ mm} \\ \ell_1 = 10{,}3 \text{ mm} \end{cases}$ $\longrightarrow$ λ = 1,26 mm

ce qui est un compromis pour une valeur moyenne de R.

L'élargissement des raies dû à la plaque inclinée représente par exemple 0,8 mm en R. Si on se place au voisinage de Po pour lequel H R = 33 1580gauss. cm et pour un champ de 14 000 gauss, un élargissement de 0,8 mm dans cette région représente en H R une augmentation de 3 pour mille soit 16 KeV ce qui est important. En effet, à partir d'une source de largeur 0,5 mm, une "bonne" raie aurait une largeur de 10 KeV environ et l'élargissement dû à l'inclinaison des plaques est donc considérable.

Toutefois la différentiation facile des parcours permet une lecture plus rapide et plus sûre des plaques (les trajectoires parasites sont également différentiées et se distinguent plus aisément).

Dans le cas de mesures d'énergie absolue qui demandent une bonne précision dans

la détermination des distances et la définition des raies, Rytz a pu avec le même principe de spectrographe (R4) disposer les plaques perpendiculairement aux trajectoires. La trace se définit alors dans la gélatine non plus comme un trait mais comme un épaississement du grain se prolongeant sous microscope lors de la mise au point en profondeur. La forme des raies est la même sur toute la largeur de la plaque et la distance séparant deux raies d'énergie même très différente se déduit directement du comptage. Ce procédé de lecture ne peut toutefois être appliqué dans une région où les traces sont en petit nombre. Dans ces circonstances il devient en effet très pénible et aléatoire de distinguer les traces rares parmi les grains de développement des plaques nucléaires et seul le comptage individuel de traces différentiées en longueur permet la sélection.

Des procédés de renforcement radioactif des traces (B1) ont été étudiés. Mais les émulsions nucléaires sont très chargées en argent et le voile de fond, difficile à éliminer, est automatiquement renforcé, si bien que cette méthode n'améliore pas le contraste.

II.2 Sources.

II.2.1 Sources préparées par activation directe .

Un support métallique placé sous tension négative recueille dans une atmosphère de gaz radioactif les descendants de ces gaz. C'est le mode de préparation le plus employé pour la préparation des dépôts actifs de Th, de Ra ou d'Ac. On ne peut partir du gaz radioactif lui-même que dans le cas du Radon dont la période est suffisamment longue. Dans les autres cas, on part d'un produit émanateur, Radiothorium ou Actinium coprécipité avec de l'hydroxyde de fer par exemple.

L'ionisation intense de l'atmosphère du récipient à activation entraîne la formation de corps chimiques qui finissent par attaquer le support même qui recueille le dépôt. C'est ce qui se produit par exemple avec le nickel. On choisit en général pour le support un métal d'oxyde instable (Pt, Au), et pour l'atmosphère du récipient on peut introduire un courant d'oxygène qui élimine la vapeur d'eau et donne un récipient avec un seul gaz pré-

sent, ce qui évite les mélanges gazeux pour lesquels existent des combinaisons stables solides (comme les composés oxynitrés par exemple) qui pourraient se fixer sur la surface à activer sous tension. L'augmentation jusqu'à 2 ou 4 kV de la tension appliquée à la lame donne le meilleur rendement. Ceci, dans nos conditions d'expérience, (dimensions géométriques de la lame à activer et du récipient), correspond à un gradient de l'ordre de 500 V/cm à la surface de la poudre active. Le gradient au voisinage de la lame recueillant le dépôt actif, atteint 10 kV/cm, limite à ne pas dépasser pour éviter les effluves qui pourraient amener un transport des grains les plus fins de la poudre.

II.2.2 Sources préparées par dépôt .

La préparation chimique préalable a pour but de concentrer l'activité dans une goutte de solution que l'on dépose sur le support de source. Après séchage, le résidu cristallisé visible qui subsiste souvent, malgré l'élimination des entraineurs et des impuretés , est supprimé par lavage à l'eau bidistillée, à l'alcool ou par chauffage. Seule subsiste la partie fixée sur le support, sans matière susceptible de donner un ralentissement, donc un élargissement des raies (R5).

On peut de même, dans certains cas, éliminer le corps déposé par un solvant approprié, laissant sur le support uniquement le corps descendant qui y a pénétré par recul (R6). Dans ce cas, la source obtenue est pure, mais souvent faible, son intensité étant liée au rendement de recul.

Dans le cas de l'Ionium, on a également préparé, par séparation isotopique à partir d'un mélange de Thorium, une source très pure mais de faible activité spécifique (Róbis).

Pour un corps à vie longue, Io ou Ra par exemple, une activité spécifique suffisante demande une quantité de matière non négligeable. Pour obtenir une répartition uniforme de la matière active, on a fixé la source, durant le séchage, sur un système animé de lents va et vient. On a également ajouté, dans le cas du Radium, du polyéthylène glycol et

le chauffage ultérieur a donné par polymérisation une source sous forme de film mince (R7).

La source se présente en général comme un trait de 10 à 12 mm de longueur et 0, 5 à 1 mm de largeur. (les dimensions de l'entrefer imposent la longueur et la largeur est limitée par la nécessité de résolution donc de finesse de raies). La limitation en surface de la source se fait, lorsqu'on n'utilise pas une tranche métallique, en recouvrant le support, en dehors de la partie géométrique déterminée pour l'activité, par une couche de vernis ou de peinture sur laquelle la matière active ne pourra s'adsorber. En fait, l'observation à la loupe ou au microscope à faible grossissement montre qu'une source ainsi préparée aboutit à un microprécipité cristallin et irrégulier donnant toujours une queue de ralentissement importante. La forme du dépôt séché est telle d'autre part, qu'une évaporation par séchage, même lent, conduit à des irrégularités d'épaisseur, les bords de la tâche active concentrant toujours une quantité plus grande de matière et souvent d'activité emprisonnée.

II.2.3 Sources obtenues par électrolyse ou dépôt spontané .

En solutions nitrique ou chlorhydrique faiblement acides (0,1 à 0,5 N), Po à froid et Ra E (^{210} Bi) à chaud, se déposent spontanément, (H1), sur des lames métalliques d'argent de nickel, ou de cuivre. Le rendement de dépôt spontané est meilleur si la lame métallique tourne dans la solution, et la limitation de la surface à activer se fait à l'aide d'un enduit isolant. On a souvent préparé des sources par dépôt spontané sur des fils d'argent ou de nickel ce qui dispense de cette limitation. De même on peut obtenir par électrolyse sur des lames d'or ou de platine, des sources de Po et Ra E d'activité spécifique élevée.

II.2.4 Sources obtenues par volatilisation .

Ce procédé a été employé au laboratoire uniquement pour le dépôt actif du Th. On part du dépôt actif obtenu par activation directe, déposé dans un creuset et chauffé sous

vide. Th (B + C) est recueilli sur une feuille de tantale ou une lame de verre. On obtient en général un dépôt invisible. Ce mode de préparation améliore la qualité des sources et les spectres obtenus présentent des raies plus fines et un fond moindre que les sources préparées par activation directe.

II.2.5 Supports de sources .

Les supports couramment utilisés étaient des lames métalliques de quelques dixièmes de mm d'épaisseur ou des tranches métalliques dont la largeur était celle de la source désirée. L'élargissement des raies des spectres est dû partiellement à la pénétration de la matière active dans le support. Une préparation du support permet d'avoir une surface très lisse d'acier inoxydable, nickel, tantale, or, cuivre ou platine. On a néanmoins remarqué qu'un polissage mécanique fin du support n'entraîne pas d'amélioration dans la largeur des raies. On préparait souvent également des sources sur une lame de verre, matériau pour lequel on avait observé une pénétration moindre de la matière active.

L'élimination des gaz descendants (Rn pour Ra par exemple) était obtenue par un piège à air liquide refroidissant le support de source durant la pose. Ce procédé toutefois a de graves inconvénients au cours d'une pose longue. En effet, le vide atteint dans le meilleur des cas est de l'ordre de 10^{-5} mm Hg et une fraction non négligeable de la pression résiduelle provient de vapeurs organiques. Dans ces conditions et, comme ordre de grandeur, on condense à peu près une couche moléculaire à la seconde sur le support refroidi. Une couche a une épaisseur de 4.10^{-8} cm, donc 1 μ g/cm^2 se condense en 5 minutes et pour une expérience de plus d'une heure par exemple, une absorption massive se bâtit sur la source.

La couche condensée évite la perte d'une partie des atomes de recul, mais introduit une épaisseur de source variant avec la durée de la pose.

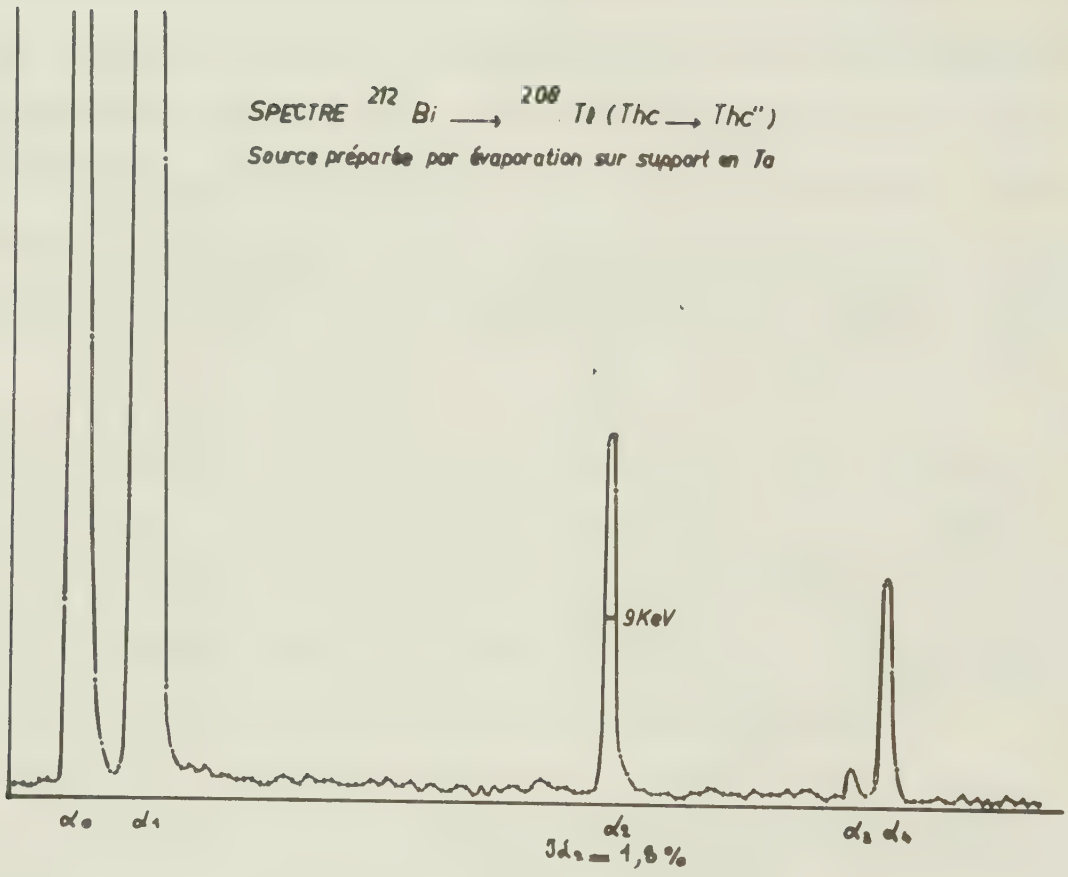
II.3 Caractéristiques des spectres obtenus .

L'élargissement des raies dû à la géométrie du spectrographe et à l'inclinaison

des plaques n'était pas seul en cause. La qualité de la source, liée essentiellement à la pureté du produit de départ et à la période du corps étudié était un facteur prépondérant. Pour les corps à vie longue en particulier, une intensité notable ne s'obtenait qu'au détriment de la finesse des raies donc de la résolution de deux raies voisines (matière inerte souvent en quantité macroscopique par rapport à la partie active). La contamination de la boîte à vide par les atomes de recul se détachant de la source ou par les descendants gazeux (Rn donnant naissance au dépôt actif), entraînait un fond continu parasite s'étendant sur toute la longueur des plaques.

La figure 5 reproduit deux courbes : l'une de la structure fine de Th C, corps sans matière, l'autre de la structure fine de ^{226} Ra dans laquelle la séparation des raies α_0 et α_1 rend néanmoins possible l'évaluation du rapport des intensités. Une comparaison entre différents spectres se faisait souvent à partir de la largeur à mi-hauteur des raies. Une raie moyenne de corps à vie courte pouvait avoir une largeur correspondant à quelques KeV. Dans le cas de corps à vie longue, Ra par exemple, la largeur à mi-hauteur était de 15 à 60 KeV. Le fond continu et ses fluctuations dûes à des causes parasites ne permettait pas de voir au delà de quelques centaines de KeV des raies inférieures à 1 pour mille de la raie principale dans le cas du dépôt actif, quelques pour mille dans le cas de corps à vie longue.

La position d'une raie sur une plaque se définissait, après soustraction du fond continu évalué à l'emplacement de la raie, par le point d'intersection avec la ligne des abscisses d'une droite joignant les premiers points de la raie du côté des fortes énergies. Dans le cas de raies très faibles, à tracé beaucoup plus incertain, on s'efforçait de comparer le contour d'une raie plus forte ramenée à faible échelle, au contour de la raie supposée, en tenant compte des fluctuations statistiques. Dans ce cas la superposition des sommets conduisait à adopter une position dont l'énergie était déterminée en tenant compte d'une large erreur. L'erreur dans ces cas là jouant également sur les intensités,


SPECTRE ^{212}Bi ⟶ ^{208}Tl (ThC ⟶ ThC'')
Source préparée par évaporation sur support en Ta
9KeV
α_0 α_1
α_2
$3\alpha_2 = 1,6\%$
α_3 α_4

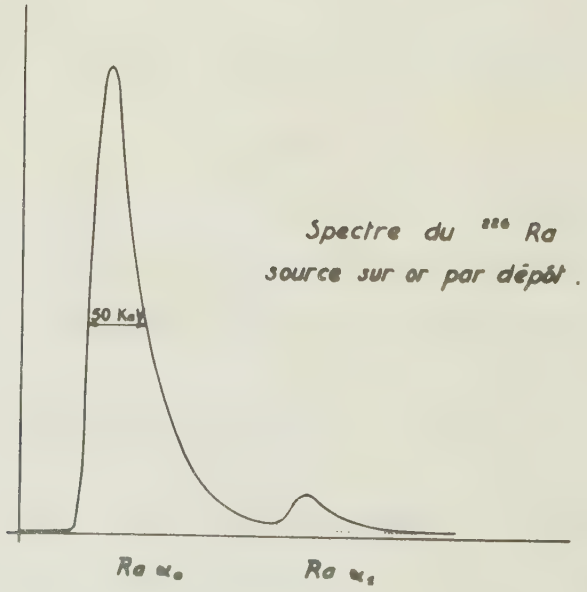

Spectre du ^{226}Ra
source sur or par dépôt.
50 KeV
Ra α_0
Ra α_1

Fig. 3

une "raie" n'était en général prise en considération que si son intensité intégrée représentait le double du fond à l'endroit indiqué, et si le phénomène se reproduisait dans plusieurs expériences.

Un trait repère, tracé à la lame de rasoir dans une position géométrique fixe et bien définie par rapport au spectrographe était également visé sous microscope et sa position était précisée à 1/20e mm près. La distance de ce trait à la ligne médiane de la fente de définition , distance de l'ordre de 500 mm, pouvait se mesurer au 10e mm près et donnait les éléments dont on déduisait R, par un calcul élémentaire, avec une bonne précision.

Le rayon correspondant à une raie de HR bien connu, Po par exemple, donnait une évaluation expérimentale de H. Pour un H constant dans tout l'entrefer, on déduit les énergies des mesures de R à l'aide de la formule classique :

$$E = m_o c^2 \sqrt{1 + \left(\frac{2e\ H\ R}{m_o\ c}\right)^2} - 1$$

En cas de variations de H au long de la trajectoire, H dans cette formule représente le champ d'induction magnétique effectif , corrigé à l'aide de la formule de Hartree ce qui nécessite l'établissement de la topographie magnétique du champ. Cette topographie avait en fait été établie par Rytz (RÓ), lors de ses mesures absolues, par le procédé de la bobine tournante avec redressement et mesure de potentiel. La correction de Hartree appliquée à la spectrographie magnétique à 180° donne :

$$H_{effectif} = 1\ H_{S\,1} + 1/2 \int \sin \psi \ dH\ d\psi$$

si ψ est l'angle définissant le point de la trajectoire pour lequel le champ est $H = 1\ H_S + dH$

Fig 4

L'appareillage utilisé au laboratoire durant cette période avait permis la découverte ou la mesure plus précise de nombreuses structures fines et la détermination de raies allant jusqu'à 10^{-3} de la raie principale pour les corps à vie longue et 10^{-4} pour les dépôts actifs et corps à vie courte, avec une précision dans les énergies de l'ordre de quelques KeV (R8) .

Or, au cours des dix dernières années, le développement des théories du noyau a permis la discussion de niveaux de plus en plus élevés.

Par exemple, pour les noyaux pairs-pairs situés loin des couches fermées, l'énergie des niveaux de rotation de spin élevé, prévus par la théorie de Bohr-Mottelson (B2), demande, pour leur mise en évidence, une amélioration de fond d'un facteur 10 à 100 dans la zone de 1 MeV environ succédant à la raie principale.

A la succession des niveaux de rotation prévue par la formule initiale de Mottelson, peuvent s'ajouter des niveaux de vibrations qui n'interviennent en général qu'après le deuxième niveau de rotation donc pour des énergies assez élevées. De même, les noyaux de A impair, possèdent des mouvements collectifs qui viennent se greffer sur des niveaux de particules et leurs schémas sont beaucoup plus complexes que prévu initialement ainsi que l'a montré Nillson (N1).

L'exploration de ces niveaux peut se faire par des méthodes expérimentales variées. L'étude des désintégrations α a l'avantage de donner sans ambiguité l'existence et la succession des niveaux dans le corps descendant (à l'exclusion des transitions entièrement interdites).

L'interprétation de ces niveaux n'est pas toujours évidente. Toutefois, si le noyau d'arrivée est entouré d'exemples déjà connus on proposera un schéma analogue. Ainsi, pour les pairs-pairs, le premier niveau est 2 + en règle générale et l'attribution d'un spin à un premier niveau excité observé n'offre pas de problème. Pour les niveaux suivants

des expériences sont en général nécessaires pour préciser spins et parités. De toutes façons, l'étude des spectres α sera complétée lorsque c'est possible par l'étude des γ, des électrons de conversion, des corrélations angulaires α γ et des coïncidences.

L'interprétation des intensités α est quelquefois ambigüe car en dehors des facteurs de pénétration et de barrière centrifuge certains empêchements sont directement fonction d'un modèle nucléaire. Dans certains cas particuliers, des auteurs ont appliqué des calculs théoriques et explicité des intensités α en fonction d'un modèle déterminé. Ainsi Chasman et Rasmussen pour 233 U (C1) ont pu prévoir certaines intensités en très bon accord avec les résultats expérimentaux de Ruiz et Asaro. Ceci suppose dans les calculs le choix de certaines constantes, en particulier celles qui tiennent compte du facteur de préformation de la particule α.

Les calculs n'ont, en tous les cas, d'intérêt que s'ils peuvent être confirmés par des résultats expérimentaux qui permettent de vérifier les hypothèses semi-empiriques faites lors de l'établissement des théories. Les niveaux de faible excitation ayant été progressivement déterminés pour tous les émetteurs α connus, il fallait envisager la recherche de niveaux plus éloignés.

La mise en évidence de niveaux de faible intensité par spectrographie α supposait toutefois une modification des conditions expérimentales et l'adoption progressive d'un nouveau dispositif et de nouvelles méthodes qui feront l'objet du chapître suivant.

III Modifications apportées au dispositif existant et aux méthodes

Le but étant de déceler des raies éloignées de la raie principale, d'intensité relative 10^{-5} ou 10^{-6}, les modifications successives ont été apportées soit à la suite d'une étude systématique, soit de façon empirique après divers essais. L'étude systématique a été faite pour des raisons de commodité avec le dépôt actif du Th, corps usuel, de prépa-

ration facile et permettant d'avoir une grande densité de traces à partir de poses peu longues.

III.1 Etudes des facteurs intervenant pour le fond continu .

L'élargissement des raies du côté des faibles énergies est dû à des particules arrivant sur la plaque avec une vitesse diminuée. Les raisons possibles de ce ralentissement sont nombreuses et complexes et la recherche d'une diminution importante du fond a conduit à prendre en considération trois facteurs principaux : la diffusion du rayonnement par les organes de l'appareil, pièces polaires ou fentes du spectrographe, la pénétration de la matière active dans le support par adsorption, et absorption du rayonnement par la matière de la source même ; enfin la perte de matière active par la source. Le rôle de ces facteurs ne peut pas faire toujours l'objet d'une étude systématique (B3). Les conditions expérimentales, la nécessité d'avoir quand même une certaine intensité enfin,limitent les modifications qu'on peut leur apporter.

III.1.1 Diffusion .

La diffusion peut renvoyer un rayon α ralenti dans le faisceau et le laisser atteindre la plaque nucléaire donc être enregistré. Cette probabilité de déviation est favorisée par les éléments de Z élevé. Ceci avait conduit traditionnellement à construire les fentes de définition du faisceau en éléments légers, aluminium par exemple ou Beryllium. Mais la diffusion par les bords des fentes n'intervient pas seule lorsque la nécessité d'avoir un champ magnétique élevé amène à utiliser un entrefer étroit. Le faisceau dans ce cas peut subir par les pièces polaires une diffusion sous faible angle. On aménagera donc l'entrefer de telle sorte qu'un point donné des pièces polaires ne puisse voir simultanément la source et la plaque, ce qui supprime la diffusion de premier ordre. Des diaphragmes anti-diffusion seront donc interposés sur le trajet des rayons avant le diaphragme de limitation du faisceau.

Le faisceau de particules est limité donc par le bord des diaphragmes. A l'échell

du parcours des α dans le matériau considéré le bord du diaphragme peut être assimilé à un plan sur lequel une partie du faisceau arrive sous faible angle.

Le mécanisme de la diffusion par les bords des diaphragmes peut se concevoir de deux points de vue : a) une trajectoire traverse tangentiellement le bord de la fente et y perd de l'énergie. Dans le cas des Z et densités faibles, cet aspect est prépondérant et on peut le minimiser en adoptant pour la forme du bord une surface à grand rayon de courbure. b) Une trajectoire frappe tangentiellement une surface pratiquement plane et en ressort après diffusion simple ou multiple. Ce phénomène est prépondérant pour un Z élevé, et son importance diminue si le bord des diaphragmes est tranchant. Mais ces deux mécanismes coexistent toujours.

La théorie élémentaire permettrait, bien entendu, de calculer l'effet du choix de Z sur la probabilité de diffusion, mais le calcul est long et mathématiquement compliqué.

Le diaphragme antidiffusant se place à hauteur de la lentille magnétique. Pour décider expérimentalement du choix du matériau devant le constituer, nous avons envisagé un essai avec trois matériaux usuels limitant un faisceau de rayons α de même vitesse (rayons α de Po) et toutes autres choses égales d'ailleurs.

La figure 5 (page 24) montre le cylindre de laiton étanche formant la chambre dans laquelle il est possible de faire le vide. Dans l'axe de l'un des couvercles est fixée la source radioactive dont le rayonnement peut être arrêté par une petite plaque métallique jusqu'à obtention d'un vide suffisant. A l'autre extrêmité du tube se trouve la plaque nucléaire. Sur le trajet des rayons sont placées trois fentes respectivement en tantale (Z = 73), aluminium (Z = 13), et vernis organique équivalent à un Z petit (~ 6).

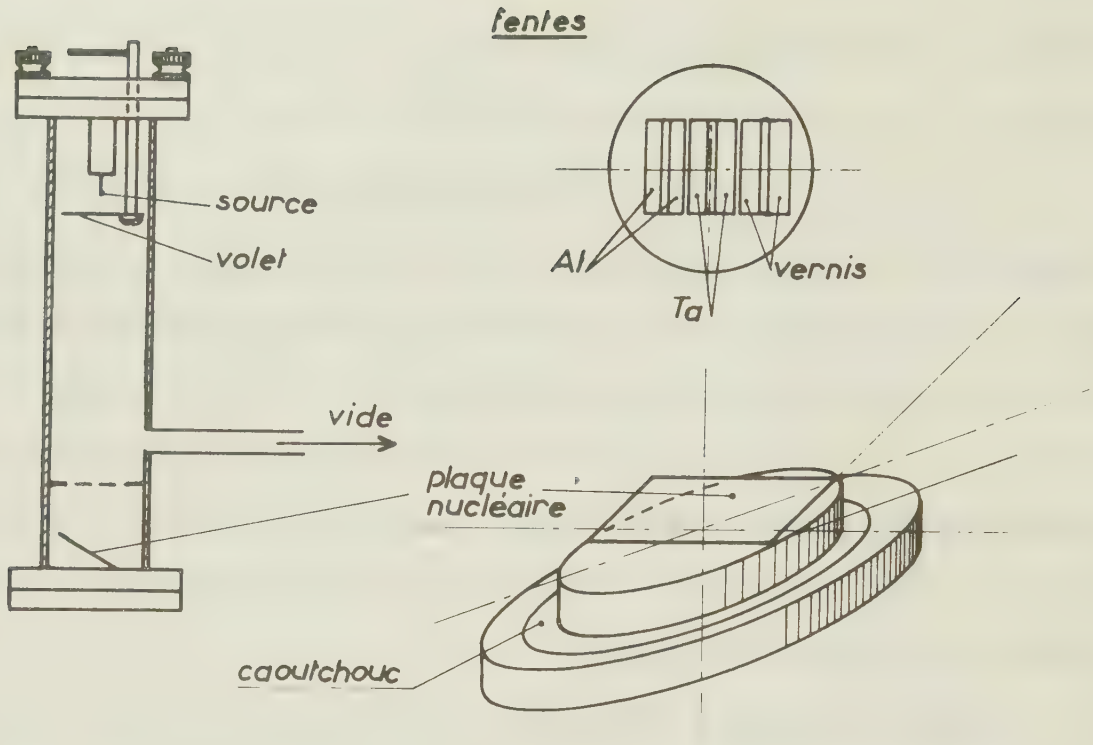


Fig. 5 Appareil pour étudier la diffusion par les fentes

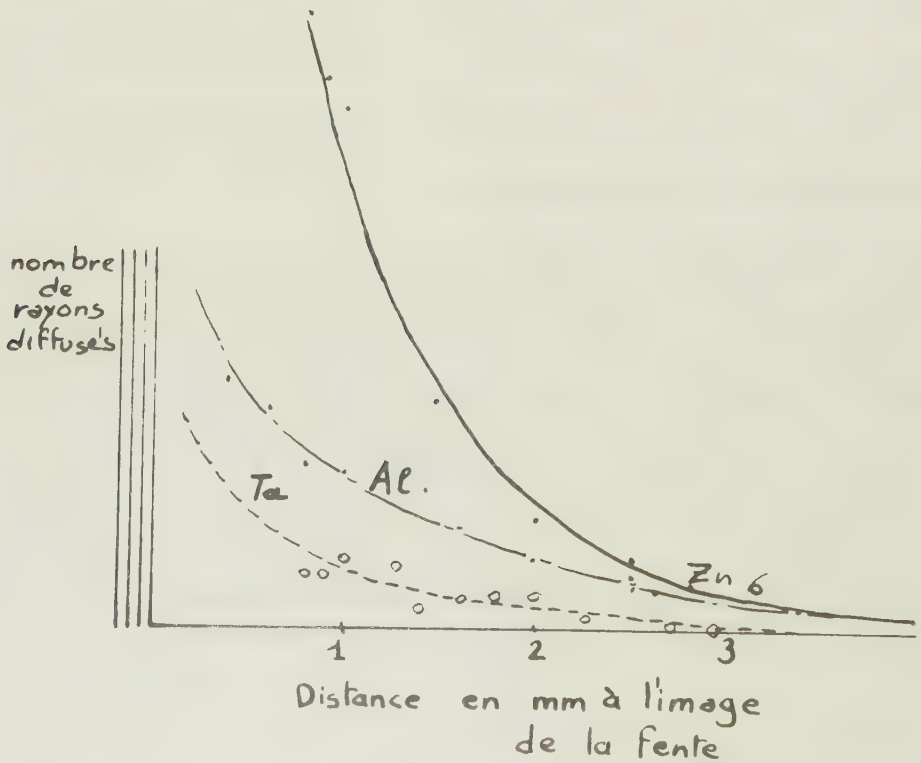


Fig 6 Diffusion pour des Z différents

Sur la plaque, on recueille une image étalée de la fente. Son axe correspond à la transmission directe et donne un noircissement pratiquement homogène et continu. De part et d'autre, en s'éloignant de l'axe, il devient possible de compter individuellement les traces dûes aux rayons diffusés par les bords des fentes ; la figure 6 (page 24) reproduit les résultats correspondants.

On en déduit sans peine que la diffusion est beaucoup plus importante et s'étend beaucoup plus loin dans le cas de Z léger. Une étude plus complète, et étendue à des Z supérieurs à celui du Ta, est en projet.

A la suite de ces essais, le choix du matériau du diaphragme principal situé au niveau de la lentille magnétique s'est porté sur le tantale. La lentille ayant des dimensions de 60 x 15 mm^2, laisse un entrefer de 11 mm dans sa partie centrale. Le diaphragme à bords de tantale, est une fenêtre de 40 x 6 mm^2, réduisant la nappe utile du faisceau mais éliminant l'effet des bords de la lentille dont le champ de fuite est mal connu. Les diaphragmes le précédant sont en laiton.

III.1.2 Perte de matière par la source .

Une source radioactive perd toujours en cours de pose une certaine quantité de matière. Ceci est plus ou moins sensible mais se produit surtout pour une source très propre. Les atomes de recul entraînent une partie de la matière active et viennent dans le vide se fixer sur des parois éloignées du porte-source formant ainsi des sources parasites qui contribuent au fond. Il a été nécessaire de prévoir une protection des sources dont la présence entraîne une modification de l'échelle des énergies. On a systématiquement distillé sur la source une mince couche d'aluminium suffisante dans tous les cas pour empêcher le départ des atomes de recul. Cette couche de protection établit une mise à la terre de la source, et évite les tensions électrostatiques.

Pour l'étude de raies très éloignées de la raie principale une précaution sup-

plémentaire a consisté à enfermer la source dans une capsule étanche fermée par une fenêtre de verre et vidée séparément durant le pompage. Cette fenêtre introduit un ralentissement qui élargit un peu les raies mais évite toute contamination du spectrographe.

III.1.3 Pénétration de la matière active dans son support .

L'expérience montre qu'une couche active (même de quelques $\mu g/cm^2$) pénétre en profondeur dans son support. La pénétration peut s'étudier soit en fonction de la nature du support, soit en fonction de son état de surface.

- Choix d'une définition de fond .

Le tracé habituel d'une raie comporte en général du côté des faibles énergies (fig. 7) une zone à partir de laquelle se développe le fond continu faiblement décroissant (partie du tracé habituellement désignée par "queue" de raie). Ayant isolé la raie de cette manière évidemment arbitraire mais plausible, et soustrait de son contour ce même fond extrapolé, on évaluera le fond continu sur une zone de 1 MeV que l'on rapportera à l'intensité totale des différentes raies d'un même corps.

C'est cette valeur du fond intégré sur 1 MeV que l'on comparera pour les différentes sources ou les différents supports.

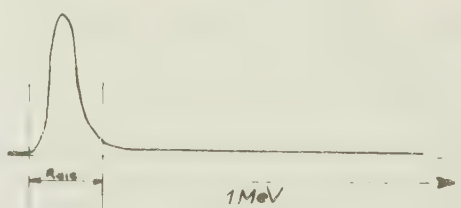


Fig 7 Définition du fond continu

- Cas de différents supports .

Le dépôt actif du Th, composé entièrement de matière active sans impuretés a

été préparé sur supports massifs d'acier inoxydable, nickel, tantale, cuivre, platine, or ou verre. Les sources étaient préparées le plus souvent par activation directe, et quelquefois par vaporisation sous vide.

L'examen des différents spectres montre que le fond défini ci-dessus varie entre 1 et 10 %. Cette même conclusion peut être tirée de l'examen des spectres obtenus par des auteurs étrangers russes ou américains.

A support identique, les sources préparées par vaporisation donnent 4 à 10 fois environ moins de fond que les sources préparées par activation directe et les meilleurs résultats sont obtenus avec le verre puis avec le tantale. A l'échelle microscopique une surface est polie si elle présente des cavités correspondant par exemple à une différence de parcours en lumière visible inférieure à 0,2 μ . C'est ce qu'on peut atteindre par polissage optique. Les polissages mécaniques laissent des irrégularités plus considérables. Peut-être le verre est-il le seul matériau poli à toute échelle et c'est pourquoi parmi tous les supports solides c'est le verre qui a donné les meilleurs résultats.

Pour des sources distillées dans le vide, j'ai voulu voir pour un support de même métal, l'influence de son état de surface sur la pénétration en profondeur.

Les essais ont porté sur des supports en nickel.

Une goutte d'une solution de chlorure de Ra a été distillée à partir d'un creuset en tantale ou platine sur des pastilles de nickel traitées de différentes manières. La pastille est alors mesurée au compteur α puis elle est frottée au papier émeri à grains fins pour détacher la couche active et l'on contrôle par pesée le nickel enlevé. On fait alors une deuxième mesure α. Le rapport entre les deux mesures α, séparées dans tous les cas par un intervalle de temps analogue, permet de comparer la pénétration.

Les résultats sont rassemblés dans le tableau de la page suivante :

Traitement du support	Pénétration en profondeur
Ni poli mécaniquement	1,5 à 2 %
Ni poli optiquement	1,5 %
Ni martelé	12,7 %
Ni martelé puis poli mécaniquement	4 %

III.1.3 - Tableau 1 -

Il résulte de ces essais que les traitements mécaniques de surface du support n'empêchent pas le cheminement de la matière active à l'intérieur de ce support.

III.2 Choix du support

La pénétration de la matière active dans le support semble inévitable. Mais si le support est une feuille mince, l'épaisseur de matière active n'excédera pas en tous cas l'épaisseur de la feuille.

Une feuille mince métallique préparée par volatilisation sous vide selon une technique devenue classique (P1) n'a pas pu constituer un support valable et a été éliminée après quelques essais. En effet, sa surface, si la feuille est de l'ordre de quelques dizaines de ρ g/cm^2 n'est jamais lisse et présente des plis nombreux servant de canaux pour la matière active. Son maniement est très difficile et on ne peut la monter sur un support sans risque de déchirures. Une feuille métallique rapprochée d'un creuset à haute température, ne peut être refroidie pour favoriser la condensation sans contact mécanique et ce contact entraîne une rupture de la feuille.

L'idée d'utiliser un film organique, formwar, collodion, acétate de cellulose fut également abandonnée. Une feuille de formwar recueillie sur un plan d'eau très propre ou

sur un miroir ramasse immédiatement les poussières de l'air ambiant quelles que soient les précautions prises. Le dégagement de chaleur du creuset suffit souvent à détruire le film et on n'a pas pu en général disposer d'une très grande intensité ce qui est nécessaire si on écarte la feuille du creuset.

Le verre avait donné les meilleurs résultats du point de vue pénétration. D'autre part le pyrex supporte des températures élevées. On a donc choisi comme support des feuilles minces en pyrex, écartant le quartz qui résisterait mieux encore à de hautes températures mais ne peut que très difficilement être préparé sous forme de feuilles minces.

On avait également envisagé de coller la feuille mince sur un support massif ce qui faciliterait les manipulations du porte-source. Dans ce cas l'expérience a prouvé que la matière active traverse la feuille et pénètre dans le support. On n'évite donc pas ainsi la pénétration dans le support et le ralentissement qui en résulte. Si bien qu'on a utilisé une feuille mince de pyrex collée par ses bords à la piscéine sur un cadre en laiton.

III.2.1 Technique de préparation des feuilles .

Le principe en est le soufflage de deux boules à l'extrêmité des deux branches d'un tube en U tournant dans la flamme. La paroi commune aux deux boules, paroi plane, est plus chaude (car moins refroidie) que la paroi de chaque bulle, donc plus mince et de plus à l'abri complet des poussières extérieures (Fig. 8).

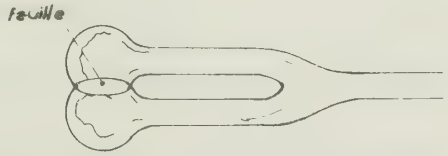


Fig.8 Soufflage d'une feuille de pyrex

Après refroidissement la feuille est recueillie sur un cadre en laiton et collée à la piscéine. Lors de l'évaporation un diaphragme entre le creuset et la feuille limite la surface.

III.2.2 Evaluation de l'épaisseur d'une feuille .

Celle-ci est nécessaire pour tenir compte dans les calculs d'énergies du ralentissement provoqué par la feuille de verre limitant la capsule.

En pratique, à partir de la formule donnant le retard optique :
$\delta(i) = 2\,e\sqrt{n^2 - \sin^2 i}$, on a établi des courbes donnant le rapport :
$\frac{\text{retard optique pour un angle i}}{\text{retard optique à incidence perpendiculaire}}$, en annotant le graphique avec la succession des couleurs d'interférence qui se produisent lorsqu'on observe la feuille en incidence variable. Lors du soufflage de la double boule, on dispose de quelques secondes pour apprécier, grâce à la couleur en lumière réfléchie, le moment où il faut interrompre le soufflage. Pour obtenir une feuille d'épaisseur voulue, on se fixe d'avance une succession de teintes et une couleur finale.

Les feuilles couramment utilisées représentaient des épaisseurs de 15 à 40 $\mu\,g/cm^2$, la feuille support de source étant généralement moins mince que la feuille fermant la capsule.

III.2.3 Limitation d'intensité pour le support choisi .

Une série d'essais faits avec le dépôt actif du Th ont montré qu'une profonde modification dans l'aspect de la feuille intervient au delà d'une certaine intensité. Sous l'effet du rayonnement, la feuille se boursoufle, n'a plus l'aspect d'une surface plane, se plisse et quelquefois casse en s'enroulant. Cette altération, habituelle pour les corps soumis à un rayonnement intense (H2), limite l'intensité des poses. Dans le cas qui nous occupe, un calcul simplifié permet de relier la perte d'énergie des rayons α dans la feuille à sa détérioration.

Soit une feuille d'épaisseur "e" sur laquelle est déposée une source considérée comme infiniment mince. Le rayonnement émis par S traverse la feuille de verre dans un angle 2π.

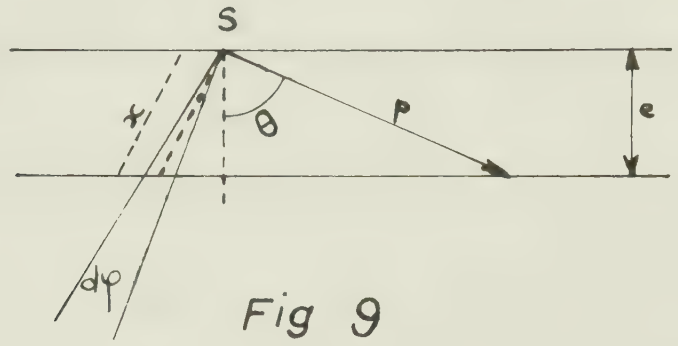


Fig 9

Le parcours d'un rayon α dans le verre est "p", toujours très largement supérieur à "e" (par exemple, pour Po, "p" équivaut à 6 mg/cm^2 dans le pyrex alors que "e" est 20 ρ g). La perte d'énergie sera totale pour les rayons émis dans l'angle $\left(\frac{\pi}{2} - \theta\right)$ avec θ défini par $\cos\theta = \frac{e}{p}$. Pour les rayons émis dans l'angle θ, la perte d'énergie sera fonction de la fraction de parcours x située dans le verre.

Quelques essais de calcul ont montré que la forme de la courbe de perte d'énergie peut faire l'objet d'une approximation assez grossière sans que les résultats soient grandement modifiés. En ajustant une parabole en trois points à cette courbe différentielle (courbe correspondant à un facteur de conversion près à la courbe de Bragg dans un gaz), une fonction de la forme $\frac{dE}{dx} = y = K(1 + a x^2)$ (1) permet d'évaluer la fraction d'énergie perdue pour les rayons émis dans l'angle d φ.

On posera pour simplifier $\int_0^p y\,dx = 1$ (2) en prenant comme unité l'énergie de la particule.

Pour un rayon donné, parcourant x dans le verre, la fraction d'énergie absorbée sera :

$$\rho(x) = \int_0^x y\,dx = Kx\left(1 + a\frac{x^2}{3}\right) \qquad (3)$$

La courbe y (x) possède comme caractéristique commode le rapport $r = \frac{y\ (o)}{y\ (p)}$ rapport des taux de perte d'énergie en début et fin de parcours pour une particule d'énergie donnée, rapport d'ailleurs variant peu avec cette énergie (pour Po, r = 0,45 par exemple).

Si on pose $\frac{x}{p} = u$, les équations précédentes donnent facilement K et "a" en fonction de u et de r.

En posant $\delta = \frac{1 - r}{3r}$

On obtient $\rho\ (u) = u\ \frac{1 + \delta u^2}{1 + \delta}$

En appelant φ , l'angle d'incidence par rapport à la surface de la feuille, la probabilité pour la particule de se trouver dans d φ est $\frac{\sin\varphi\ d\varphi}{2}$

1) comme $u = \frac{e}{\cos\varphi}$, la perte d'énergie pour les particules émises dans l'angle θ est (rapportée à une particule émise par S dans 4π) :

$$R_1 = \int_0^\theta \rho(u)\ \frac{\sin\theta\ d\theta}{2} = \frac{e}{2(1 + \delta)} \int_0^\theta \frac{\sin\theta}{\cos\theta}\left(1 + \frac{\delta\ e^2}{\cos^2\theta}\right) d\theta$$

$$= \frac{e}{p}\ \frac{1}{4(1 + \delta)}\left[2\ \ell n\ \frac{p}{e} + \left(1 - \frac{e^2}{p^2}\right)\right] \quad \text{où } \frac{e^2}{p^2} \text{ est négligeable}$$

dans les cas courants.

2) La contribution des particules absorbées totalement est :

$$R_2 = \int_\theta^{\frac{\pi}{2}} \frac{\sin\varphi}{2}\ d\varphi = \frac{\theta}{2p}$$

d'où la fraction d'énergie absorbée par le verre, pour une particule α émise par la source :

$$R = R_1 + R_2 = \frac{e}{2p(1+\delta)} \left[1 + 1{,}5\,\delta + \ell n \frac{p}{e} \right]$$

Comme exemple pratique :

Source de Po : 5,3 MeV et feuille de 20μg pyrex

$p \sim 6$ mg/cm^2 dans le pyrex

$\delta \sim 0{,}4$

$R \longrightarrow 7{,}2.\ 10^{-3}$ soit $\sim$ 40 KeV par particule

On a observé dans la pratique une destruction presque totale de la feuille pour une intensité de pose intégrée de $\sim 5.\ 10^{14}$ α/cm^2. Or, dans une feuille de pyrex de 20 μg, il y a un nombre d'atomes de $\sim 6.\ 10^{17}$/cm^2 : <u>la destruction intervient pour $\sim$ 30 eV par atome</u>.

De plus, la répartition de perte d'énergie n'est pas uniforme dans la feuille. En principe $\frac{dR}{de}$ devient infini pour e = o. En fait, les trajectoires ne sont pas rectilignes, la feuille n'est pas plane et la source n'est pas infiniment mince. Il y a un maximum d'effet des rayons du côté de la source et c'est là que débute la rupture lorsque la feuille cède.

En pratique, la prudence impose, surtout lorsque le corps risque de contaminer le spectrographe, de ne pas dépasser 10^{14} α émis/cm^2 au cours de la pose. (Une feuille de verre aussi mince, quand elle se casse, se disperse en parcelles légères et ténues qui se fixent sur le spectrographe ou les pièces polaires et sont une cause très difficile à localiser de contaminations).

III.3 <u>Préparation des sources</u> .

Dans la première partie ont été décrits les modes de préparation de sources précédemment utilisés. Les résultats obtenus avec le procédé de volatilisation ayant été nette-

ment favorables à l'amélioration du fond, nous nous sommes attachés à le perfectionner à l'exclusion des autres procédés momentanément abandonnés. Ce mode de préparation donne de plus des sources suffisamment homogènes et permet une purification physique préalable ainsi qu'on le montrera.

La feuille de verre collée sur son support ou la tranche métallique doivent recevoir sur une surface de quelques mm^2 une quantité de matière active, correspondant à une proportion notable de l'activité dont on dispose. Les modifications apportées à l'évaporateur classique l'ont été en fonction de ces nécessités, en fonction également des problèmes propres à chacun des corps étudiés. Toutefois, la pratique d'un très grand nombre d'essais de volatilisation a permis de faire une série de remarques d'ordre général que nous allons exposer succinctement.

III.3.1 Généralités sur la volatilisation .

De manière tout à fait générale, les données thermodynamiques existantes ne s'appliquent que dans le cas de produit de départ visible à l'oeil, ce que nous appellerons par la suite en quantité macroscopique.

On peut considérer que :

un grain est visible à l'oeil en vision directe à partir de 1 μ g, visible à la loupe à partir de 1 mμg, et au microscope à partir de 10^{-11} g. Sur une surface de source de 1 à 2 mm^2, la quantité de matière distillée pour avoir une "bonne source", ne devra pas dépasser quelques dixièmes de μg.

On aura donc un produit de départ représentant une quantité de matière infime et dans ces conditions, la température de volatilisation du corps sera presque toujours plus élevée que ne l'indiquent les données. En effet, l'énergie de liaison du corps avec son support est différente de son énergie de liaison avec lui-même dont la modification définit les données classiques de températures de volatilisation.

Le corps à vaporiser se présente sous forme soit d'un métal pur, soit d'un composé chimique.

a) le corps à vaporiser est un métal pur.

Ce cas est le plus favorable. En effet, pour un métal, les données thermodynamiques sont connues avec sûreté. De plus un dépôt sous forme purement métallique sera constitué à 100 % de matière active "utile".

Il faut éviter dans ce cas toutefois la possibilité d'alliage avec le métal du creuset lui-même. En effet la tension de vapeur d'un alliage est plus faible que celle de chacun des métaux qui le composent donc le départ est plus difficile. Dans le cas de Po, considéré plus loin par exemple, Po forme probablement avec le platine du creuset un alliage qui ne se volatilise qu'à 500° $\sim$ tandis que, dans un creuset en tantale, le départ sous forme de Po métal est total dès 250°. Cette propriété est spécialement importante dans le cas d'une élimination préalable de Po par chauffage à basse température.

Parmi les corps étudiés, Po et Bi sont ceux que l'on peut obtenir sous forme métallique. Ces deux corps, électrochimiquement nobles, se déposent spontanément ou par voie électrolytique sur différents métaux.

Le dépôt spontané a été écarté pour des considérations de rendement : celui-ci en effet n'est satisfaisant que si la lame support tourne dans la solution; la limitation du dépôt à une petite surface suppose l'introduction sur la lame de vernis ou corps étranger qu'il faut ensuite éliminer pour la volatilisation, enfin la proportion obtenue par dépôt spontané sur une petite surface est faible. On a donc procédé toujours par électrolyse.

La feuille métallique qui formera le creuset à distillation est alors utilisée comme électrode négative, la deuxième électrode étant en général constituée par un fil de Platine très fin de faible surface. En effet pour toutes les intensités de courant, le

dépôt a toujours lieu à la fois sur les deux électrodes et on a avantage à minimiser les phénomènes anodiques. Le dépôt électrolytique sera limité à une surface de quelques mm de diamètre pour des raisons qui seront précisées plus loin.

La volatilisation de Po et Bi, ainsi obtenus à l'état métallique, se produit pour des températures de $\sim 250°$ et $\sim 650°$, avec un départ de 100 %, donc un rendement très favorable.

De même, dans certains cas Pb peut être volatilisé sous forme métallique. Ainsi des essais d'activation en atmosphère neutre (atmosphère d'argon), ont amené à la conclusion que le dépôt actif est obtenu sous forme de métal (mélange de Pb + Bi), alors qu'une activation en atmosphère ordinaire ou d'oxygène donne le dépôt actif sous forme d'oxyde. Dans le cas de mélange Pb + Bi, aux environs de 700°, la distillation de Bi est plus complète que celle de Pb. On a une source de Th C presque seul. Au contraire, lorsqu'on part de dépôt actif oxydé, on obtient une source avec une proportion plus grande de Pb (Th B) que de Bi (Th C).

b) le corps à volatiliser est un composé chimique.

La succession des opérations chimiques aboutit dans la plupart des cas à un composé et non au métal pur. Le but à atteindre étant le départ de ce composé, quelle que soit la forme chimique sous laquelle se fait le dépôt, les remarques suivantes s'appliquent à différents cas qui se présentent fréquemment.

Notons tout d'abord que la distillation d'un composé est plus complexe que celle d'un corps pur. Les nombreuses anomalies constatées dans les températures de volatilisation sont en relation probable avec les réactions chimiques intervenant entre le corps ou ses produits de décomposition et le métal du creuset ou les corps gazeux subsistant dans l'atmosphère de la cloche où le vide n'est jamais excellent.

- Cas des nitrates et des oxydes.

Ces deux cas sont souvent analogues car en général les nitrates chauffés sous vide se décomposent en oxydes et les oxydes sont très difficiles à volatiliser. Notons toutefois que Pb et Bi peuvent être volatilisés sous forme d'oxydes. Les dépôts actifs, provenant d'activation directe sous tension de lame métallique, sont oxydés en atmosphère ordinaire ou de balayage par l'oxygène. L'oxyde de Pb servira souvent de générateur à vie plus longue des Bi émetteurs α (les corps B émetteurs β ont toujours une vie plus longue que les corps C et on a intérêt à disposer d'un corps à vie plus longue, la durée des manipulations intervenant pour la diminution d'activité du corps désiré). Le Th B oxydé sera sans peine volatilisé vers 800°, ou plus exactement on aura dès cette température, distillation du mélange oxydes de Pb et Bi dans des proportions qui ne sont pas exactement reproductibles d'un cas à l'autre.

- Halogénures .

Ce sera le cas le plus fréquent.

Les fluorures ont une température de fusion plus élevée que les chlorures ; ceux ci plus élevée que les bromures. Les fluorures sont donc en général les plus stables à haute température mais leur température de volatilisation est également plus élevée. Par contre ce sont des sels moins hygroscopiques et dans le cas du radium en particulier, on aura intérêt à choisir un fluorure lorsqu'on peut le faire. Avec Ac X (^{223}Ra), qui peut se volatiliser en quantité microscopique pour une activité suffisante, Ra F_2 quitte un creuset en tantale aux environs de 1 700°.

Les chlorures au contraire des nitrates sont stables sauf pour les corps à valence élevée. Mais les chlorures de corps lourds qui nous intéressent sont souvent hygroscopiques. Un chlorure déposé dans le vide sous forme anhydre, se réhydrate lors de la rentrée d'air et, soit recristallise sous forme hydratée, soit se transforme en gouttelettes liqui-

des (par exemple $Th\ Cl_4$). Tout ceci à l'exception d'une fraction très faible qui se fixe sur la surface (quantité $< 1 \mu g/cm^2$). Il faut donc éviter les chlorures, lorsqu'on sait qu'ils sont hygroscopiques et qu'il s'agit de quantités de matière $> 10^{-7}$ g.

III.3.2 Préparation du creuset.

Les creusets employés le plus couramment ont été en platine ou tantale. Le creuset doit être en un métal de température de fusion élevée, facile à travailler, enfin neutre vis à vis du corps à étudier. Un creuset en platine répond à ces exigences mais les métaux utilisés dans notre cas pour fabriquer les creusets n'étaient pas spectroscopiquement purs et, bien avant la température de volatilisation du platine, des impuretés s'en échappaient. (Pour le platine, qui a une température de fusion de 1 800°, on ne pouvait guère dépasser un chauffage de 1 300° sans avoir de couche métallique visible provenant du creuset).

Pour toute vaporisation au delà de cette température, on prendra du tantale (température de fusion 3 000°). Le tantale, corps très réducteur, sera écarté lorsqu'il s'agit de composés peu stables. Toutefois, dans le cas de chlorures, $Ta\ Cl_5$ est gazeux et sans inconvénient et même s'il y a réduction des chlorures l'expérience montre que la distillation se fait bien. D'autre part, l'oxydation du tantale commence dès 300° dans les conditions ordinaires de température et de pression et $Ta_2\ O_5$ se volatilise à partir de 1 000° environ. Dans le cas du tantale, la purification par chauffage préalable se fera donc toujours sous bon vide.

Le choix de la forme à donner au creuset dans notre cas particulier est guidé par un certain nombre de considérations : la surface de source moyenne étant 4 x 0,4 mm^2, et le souci étant toujours d'avoir le rendement le meilleur, la partie active du creuset couvre toujours une surface minimum (par exemple surface d'évaporation d'une goutte de 0,02 cm^3). Autour de la partie active le creuset a la forme donnée dans la figure 10. L'étranglement et les entailles sont destinées à avoir un chauffage maximum concentré dans une faible portion du creuset (partie centrale), et l'ouverture réduite donne une concentra-

tion de la vapeur sur la fente de canalisation sur laquelle repose la feuille. Dans le cas d'une source sur tranche métallique, l'ouverture du creuset est telle que le flux sortant est dirigé sur la surface utile de la tranche, le support qui maintient la tranche dans l'évaporateur ne recevant qu'une fraction d'activité.

Les creusets habituels se font dans des feuilles de platine de 0,03 mm d'épaisseur ou de tantale de 0,04 mm ; les feuilles de 8 mm de largeur sont pliées en deux et ont subi au préalable un dégazage sous vide à haute température pour les débarrasser de toute impureté.

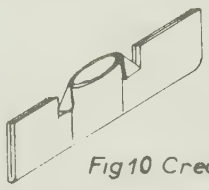


Fig 10 Creuset

III.3.3 Aménagement de l'évaporateur .

La photographie de l'évaporateur est donnée dans la figure 11. L'aménagement intérieur comporte deux systèmes de chauffage. Les bornes d'arrivée du courant de chauffage du creuset sont refroidies. La disposition permet une fixation rapide du creuset et la feuille sera ajustée au dessus du creuset à une distance variant entre 0,1 et 1 mm selon les exigences d'intensité.

Le deuxième dispositif de chauffage comporte un filament de tungstène à partir duquel distille l'aluminium à déposer comme protection sur la surface de la source.

Le temps de chauffage du creuset est très bref : de l'ordre de 1 seconde, il est, en général, précédé d'un préchauffage de purification en impuretés organiques ou corps plus volatils. L'appréciation de la température du creuset se fait à l'oeil au moment de l'expérience, mais un étalonnage préalable à l'aide d'un pyromètre à effacement de filament a donné l'échelle des températures pour une forme de creuset et un courant donnés.

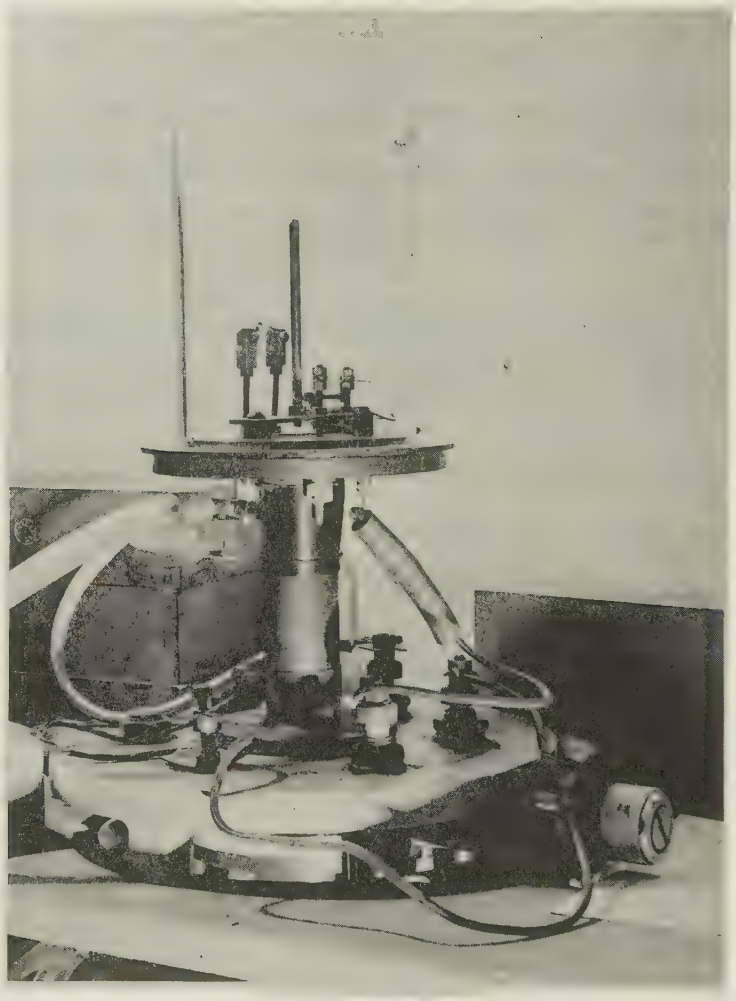


Fig. XI

L'intérieur de l'évaporateur est tel que son appareillage est facile à démonter les évaporations entraînant souvent un nettoyage complet en vue de décontamination.

Ajoutons que le vide obtenu est toujours mauvais pour des raisons pratiques. Entre la pompe et la cloche, on a installé une série de chicanes, destinées à arrêter les contaminations, et qui ralentissent le pompage. Le groupe de pompage utilisé donne un vide apprécié à quelques 10^{-4} mm Hg.

III.3.4 Mécanisme de fixation sur la feuille .

La condensation du produit volatilisé sur la feuille source dépend du coefficient d'attachement au premier choc sur la surface. Ce coefficient dépend lui-même de la

température du support et diminue beaucoup lorsque cette température augmente (W2).

Or, dans les conditions habituelles de travail, la feuille est très près du creuset lui-même à température très élevée. Il a fallu songer à refroidir la feuille et on a choisi de déposer une goutte de Hg sur la face postérieure. La distillation se fait donc en présence de vapeur de Hg et en cas de métal amalgamable on installe dans la cloche même un piège à air liquide.

III.4 Précautions générales.

Il y a pour la préparation et la manipulation des sources et des appareils des règles valables dans tous les cas et que je vais résumer rapidement.

III.4.1 Elimination des poussières.

Une poussière visible à l'oeil ou à la loupe introduit une inhomogénéité et un ralentissement. Il faut donc travailler en atmosphère privée de poussières par une ventilation constante. On vérifie à la loupe ou même au microscope que la surface de la source n'a pas recueilli de poussières et le transport de la source jusqu'au spectrographe se fait dans une boîte étanche.

III.4.2 Contrôle des récipients et des réactifs

On procède à un lavage préalable très soigné à l'acide pur puis à des rinçages à l'eau tridistillée de tous les récipients utilisés qui seront, lorsque cela est possible, en quartz. Les préparations chimiques utilisant des solvants organiques comportent de nombreuses séparations de phases à l'aide de pipettes ; les caoutchoucs des pipettes sont soigneusement lavés à l'alcool, chaque pipette ne sert qu'une fois et on l'a quelquefois munie d'un siphon prévenant les projections et remontées de liquide.

Les réactifs organiques et minéraux sont distillés avant usage dans des distillateurs en quartz. Le contrôle, par évaporation à sec d'une partie aliquote du produit obte-

nu, nous a montré que H Cl s'obtient beaucoup plus pur que $H N O_3$. De plus les chlorures sont plus sûrement solubles que les nitrates et on a utilisé de préférence H Cl. L'acide chlorhydrique, dilué plus ou moins s'est révélé l'agent le plus efficace pour détacher d'un récipient en quartz l'ultime produit des purifications chimiques successives, évaporé à sec et repris par un microgoutte de solution acide pour être transporté dans le creuset.

III.4.3 Mise en route et arrêt des poses .

La résistance mécanique de feuilles de pyrex de 20 à 40 $\mu g/cm^2$ est évidemment très faible. Ainsi un essai de compression fait sur une feuille montée sur son support a montré que la pression de rupture d'une feuille de 20 μg est de l'ordre de 50 mm $H_2 O$. Or le vidage du spectrographe préalable à la mise en route des poses, entraîne dans le cas de la source enfermée dans une capsule étanche, une dépression qui pourrait causer une rupture de la source ou de la fenêtre fermant la capsule. On vide la capsule, en même temps que le spectrographe, par l'intermédiaire d'une canalisation assez longue dans laquelle pourront se fixer les contaminations provenant éventuellement de la source. Ceci introduit une différence de pression entre l'intérieur de la capsule et le reste du spectrographe, dépression que l'on limite à 0,5 mm Hg en vidant l'ensemble très progressivement et très lentement.

Le début et l'arrêt des poses sont assurés de façon classique par interposition d'un volet sur les trajectoires.

La rentrée d'air dans le spectrographe donne lieu à l'opération inverse de la mise en route avec la même progression.

III.5 Deuxième dispositif spectrographique .

Le dispositif spectrographique à 180° décrit en II.1.1 comporte des aberrations proportionnelles au carré de l'angle radial d'utilisation et d'autre part est très sensible à la position de la source par rapport à la fente de définition. Enfin le dispositif à plaque

inclinée entraîne une déformation des raies. Or la préparation de sources par volatilisation donne une position géométrique de source qui n'est pas parfaitement définie d'une part et d'autre part dans le cas de feuille mince limite l'intensité que l'on peut obtenir.

Le souci d'augmenter l'efficacité du spectrographe a conduit à supprimer la fente de définition au voisinage de la source. La géométrie de la source étant imprécise, le diaphragme de définition du faisceau interviendra sur le trajet des rayons à mi-distance à peu près entre la source et la fente. Une lentille magnétique en ce même point (W1) augmentant la courbure du rayon central du faisceau l'amène à rencontrer la plaque au point même où convergent les rayons extrêmes (figure 12). Ceci transforme la focalisation radiale de premier ordre en focalisation de second ordre pour un rayon de courbure donné.

Une série de diaphragmes précédant la fente de défintion, empêche la diffusion par les pièces polaires de rayons parasites. Le spectrographe utilisé est tel qu'aucun point des pièces polaires n'est visible à la fois par la source et par la plaque.

Dans cette nouvelle disposition, le plan de la plaque peut être considéré comme plan focal à une bonne approximation. Le lieu des points d'intersection des trajectoires extrêmes, correspondant à des rayons de différentes vitesses donc de courbures différentes est, ainsi que le montre le calcul, une hyperbole. La plaque sera confondue avec la tangente à cette hyperbole au point de meilleure focalisation ce qui représente un écart avec la ligne focale n'excédant pas 25 microns pour les extrêmités de la plaque. Il n'y a donc pas de déformation des raies par défocalisation.

Les faisceaux de trajectoires, canalisés par cinq ouvertures ménagées dans le diaphragme, sont enregistrés sur une plaque nucléaire inclinée par rapport à la position prévue pour la plaque dans le spectrographe. Le point de convergence des faisceaux définit le le point focal qui, doit être aussi ponctuel que possible. Les photos reproduites dans les figures 13 et 14 montrent deux étapes du réglage de la focalisation. Le réglage fin est obtenu par corrections mécaniques progressives de la lentille. La ligne focale (position défi-

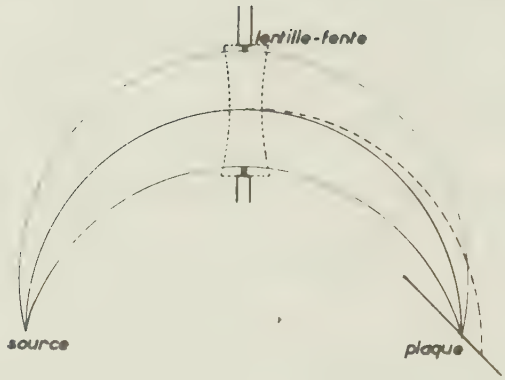


Fig. 12. Principe de la focalisation de 2ème ordre

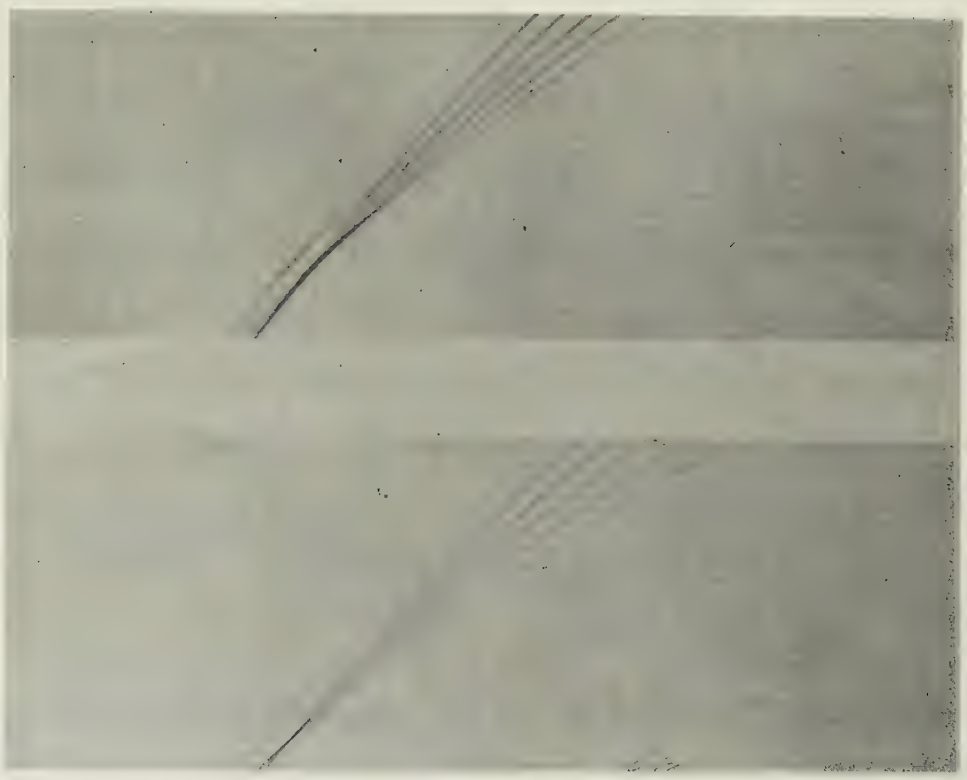


Fig XIV

nitive de la plaque nucléaire) passe ici par les deux points correspondants à des rayons α de deux vitesses différentes (raies α_0 et α_1 de ^{212}Bi). A partir de la lentille ainsi modifiée, la région de bonne focalisation est ensuite précisée expérimentalement, à l'aide de poses faites avec des champs différents et des enregistrements sur une plaque normalement placée sur le spectrographe.

La lentille correctrice a été calculée pour un rayon de courbure de trajectoire moyenne R_o = 256 mm. Le champ régnant dans l'entrefer est adopté en fonction du HR moyen du domaine d'énergies étudié, domaine limité en fait par le champ maximum que l'on peut obtenir. De façon pratique, avec le Grand Aimant Permanent de Bellevue, la région de bonne focalisation peut être obtenue pour 6500 KeV au plus, la longueur de la plaque couvrant un domaine d'énergies de 15 % en plus ou en moins de l'énergie choisie.

Ajoutons que dans le dispositif spectrographique représenté par la figure 15, la plaque reçoit les rayons sous un angle de 45° environ et que la différentiation des parcours dans la gélatine se fait sans peine.

Pour la lentille utilisée le point de bonne focalisation est connu. Les autres raies, obtenues lors du dépouillement de la plaque seront situées à une distance "u" de ce point .

Si $F_1 F_2 = 2 f_m$ (ouverture du diaphragme)

et $t = \dfrac{E - E_o}{E_o}$

On a en première approximation pour les raies proches de la région de bonne focalisation :

$$u = \sqrt{2}\left(1 + \frac{f_m^2}{4}\right) \ln t$$

d'où $t = \text{Cte}\ e^{bu}$

De cette formule on déduira E.

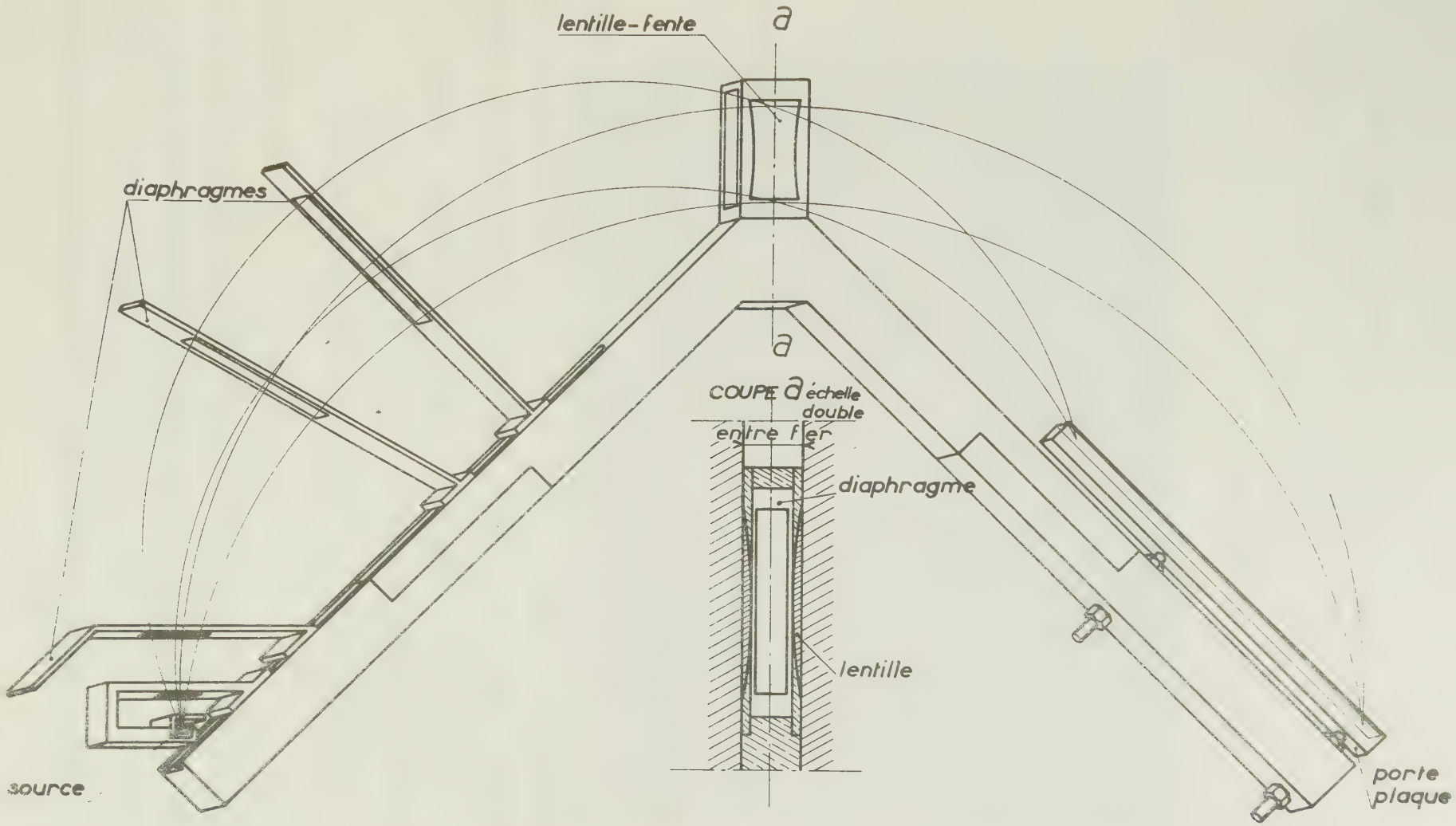


Fig. 15 2ème SPECTROGRAPHE echelle: 5 cm

Cette détermination est suffisamment exacte pour un domaine de 200 KeV de part et d'autre du point de bonne focalisation.

Au delà de cette région, le développement limité n'est plus valable et on a une expression de la forme :

$$u = 2\left(1 + \frac{f_m^2}{4}\right) \ell n\, t + f(t)$$

en pratique on part de :

$$t = A\, e^{bu} + f'(u)$$

$$\text{ou } \log E = \log E_o + bu + cu^3 + du^4$$

La fonction de u, f' (u), se calcule en ajoutant au développement limité les termes de troisième et de quatrième ordre, dont les coefficients sont déterminés à partir de raies d'énergie connue. Pour établir correctement une échelle d'énergies, il faut disposer de quatre raies bien connues qui servent à établir la formule. Les constantes étant ainsi empiriquement fixées, l'application de la formule donne l'énergie pour une raie d'abscisse "u".

III.6 Analyse des spectres obtenus.

Les calculs précédents s'appliquent à une source idéalisée linéaire donc géométriquement bien définie. Or, dans les conditions habituelles, la répartition de la matière n'est pas parfaitement uniforme. Des considérations de rendement font que l'on approche le creuset de la feuille et la densité de la source n'est pas constante. De plus, malgré le diaphragme situé entre le creuset et la feuille, l'étalement de la matière est inévitable.

Il en résulte que les raies obtenues ont une forme sensiblement différente de celle que prévoit le calcul et que chaque source donnera "sa" forme de raie. Si un corps contient des dérivés radioactifs, la répartition de matière active ne sera pas la même pour les différents membres de la filiation et on aura sur une même plaque une forme de raie différente selon le rang dans la filiation. Par contre, les raies de structure fine d'un même

corps auront une forme identique et la forme pourra permettre de décider de l'attribution d'une raie. En règle générale, une raie correspondant à un descendant ayant subi plusieurs reculs, sera normalement plus large que la raie de la substance mère.

A partir de cette forme pratique et valable pour une source déterminée, on déduira l'énergie et l'intensité d'après certaines critères définis ci-dessous.

III.6.1 Détermination des énergies.

Le dispositif précédemment décrit donne une forme de raie différente selon que l'on est dans un domaine d'énergies supérieures ou inférieures à l'énergie E_o correspondant au point focal F (figure 16).

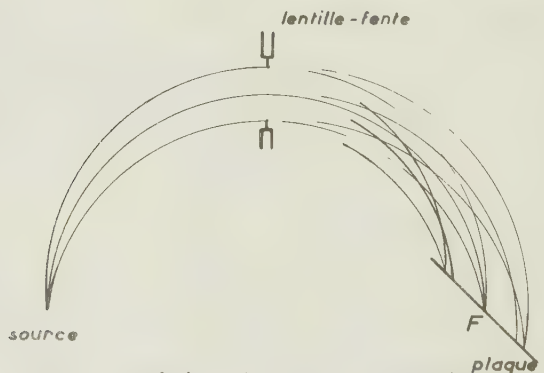


Fig.16 Variation de forme des raies

On voit sur la figure que pour $E < E_o$ la montée des raies est constituée par les trajectoires passant par le centre de la lentille, tandis que pour $E > E_o$ ce sont les trajectoires passant par les deux bords extrêmes du diaphragme. D'où la différence de forme selon la région de la plaque où se trouvent les raies.

L'élargissement des raies dû aux résidus d'impuretés coévaporés lors de la volatilisation, se traduit en pratique par une répartition statistique à allure gaussienne. Pour en tenir compte, on a abandonné l'extrapolation à la base des premiers points de montée, trop peu précise, et on adopté pour l'emplacement des raies une définition nouvelle qui sera appliquée dans la deuxième partie.

La forme habituelle d'une raie étant celle de la figure 17 soient x_1 et x_2, x'_1 et x'_2, x''_1 et x''_2 les abscisses des points du tracé continu d'une même raie correspondant à une même ordonnée de part et d'autre du sommet. La ligne médiane passant par les points $\frac{x_1 + x_2}{2}$, $\frac{x'_1 + x'_2}{2}$, $\frac{x''_1 + x''_2}{2}$ rencontre le tracé du sommet de la raie en un point dont l'abscisse x_o sera choisie comme définition de position de la raie considérée. Les distances entre les raies seront ensuite mesurées à partir de ces points.

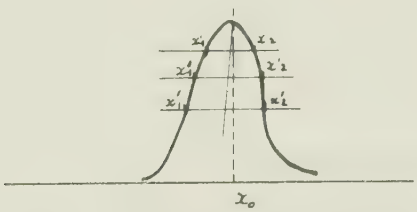


Fig 17 Definition d'une raie

Pour les raies faibles, le même principe de définition s'appliquera avec une indétermination plus grande, leur contour étant plus difficile à tracer surtout si elles se trouvent dans un domaine d'énergies éloigné de toute raie témoin d'intensité suffisante. Un comptage faible entraîne toujours une imprécision de détermination et seule une diminution très grande du fond continu permet dans ce cas d'affirmer l'existence d'une raie signalée par l'anomalie de la répartition des points au delà des fluctuations statistiques prévisi-

sibles. Si c'est nécessaire, on cherche la meilleure position d'un calibre correspondant à l'intensité présumée à l'aide de la méthode des moindres carrés.

Des corrections seront faites également pour tenir compte de l'absorption dans l'aluminium de protection et éventuellement de la feuille de fermeture de la capsule (R9) et pour tenir compte du recul ainsi qu'on le verra à propos de la spectrographie du radium.

III.6.2 Détermination des intensités .

Le nouveau dispositif donne au long de la plaque une variation d'angle solide avec l'énergie beaucoup moins simple que le dispositif classique dans lequel seul varie l'angle axial d'utilisation, inversement proportionnel à R.

L'entrefer très étroit, de 15 mm, dans lequel est logé le spectrographe pourvu de tous ses diaphragmes antidiffusants limite l'angle solide utile du faisceau à $2,3.\ 10^{-3}$ stéradians. Une variation de l'angle solide avec l'énergie pourrait se calculer si seule existait comme limitation du faisceau le diaphragme situé à hauteur de la lentille. Mais l'introduction des diaphragmes antidiffusion fait que la source n'est pas à 100 % visible de toutes les parties de la plaque et le calcul théorique du faisceau utile arrivant en un point de la plaque ne correspond pas à la source réelle.

En pratique, on fait une détermination empirique de la variation d'angle solide pour une source donnée, ce qui ne présente pas de difficultés lorsqu'on est en présence de plusieurs corps en filiation d'énergie différente. On peut aussi établir à partir d'une source de position géométrique bien déterminée, (source sur tranche métallique du type de celles utilisées par Rytz pour la détermination des énergies absolues) (R4), une échelle qui donnera la variation des intensités enregistrées au long de la plaque, et l'intensité des raies nouvelles sera interprétée à partir de cette répartition connue.

Dans le cas de raies d'intensités très différentes, on fera plusieurs poses. Une pose longue, destinée à déceler les raies d'intensité relative faible, (par exemple 10^{-6} de

la raie principale), sera suvie de poses plus courtes sur lesquelles on pourra compter les raies principales, qui, sur la pose longue, sont trop denses et ne peuvent donner lieu à un comptage individuel des traces. L'interprétation des rapports des poses successives tiendra compte éventuellement de la période du corps étudié.

III.7 Développement et dépouillement.

Les plaques nucléaires habituelles utilisées ont été des plaques Ilford E_1 25 μ. Le développement se fait dans un bain d'Azol à 2 % avec de l'eau filtrée, à plat et sans agitation pour éviter une déformation de la couche de gélatine. Le début du développement se fait à une température de quelques degrés C, le révélateur s'échauffant ensuite jusqu'à température ambiante au cours du développement (cette température ne devant pas excéder 20° C). Le début du développement avec un révélateur froid permet à la gélatine de s'imprégner complétement de révélateur avant que celui-ci ne commence son action, qui ainsi se produit de façon plus régulière dans toute l'épaisseur de la gélatine. Un bain d'hyposulfite à 330 g par litre, refroidi également jusqu'à 3 ou 4° C, permet un arrêt brusque du développement et un fixage très rapide.

Enfin, les plaques sont lavées à l'eau courante filtrée en vue d'éliminer les petites parcelles solides de l'eau pouvant s'incruster dans la gélatine. Le séchage a lieu à plat et lentement.

Le comptage individuel des traces dans la plaque se fait sous microscope par bandes de 100 μ couvrant une largeur constante de la plaque. Le grossissement moyen (x 400) est obtenu par un objectif à sec. L'interprétation d'un spectre complexe demande des poses multiples et le dépouillement d'un spectre comme celui de la famille du radium à supposé le comptages de plusieurs centaines de milliers de particules. Pour les statistiques faibles, intervient une discrimination ; une partie des particules formant le fond ne provient pas directement de la source et pénètre dans la plaque sous un angle différent.

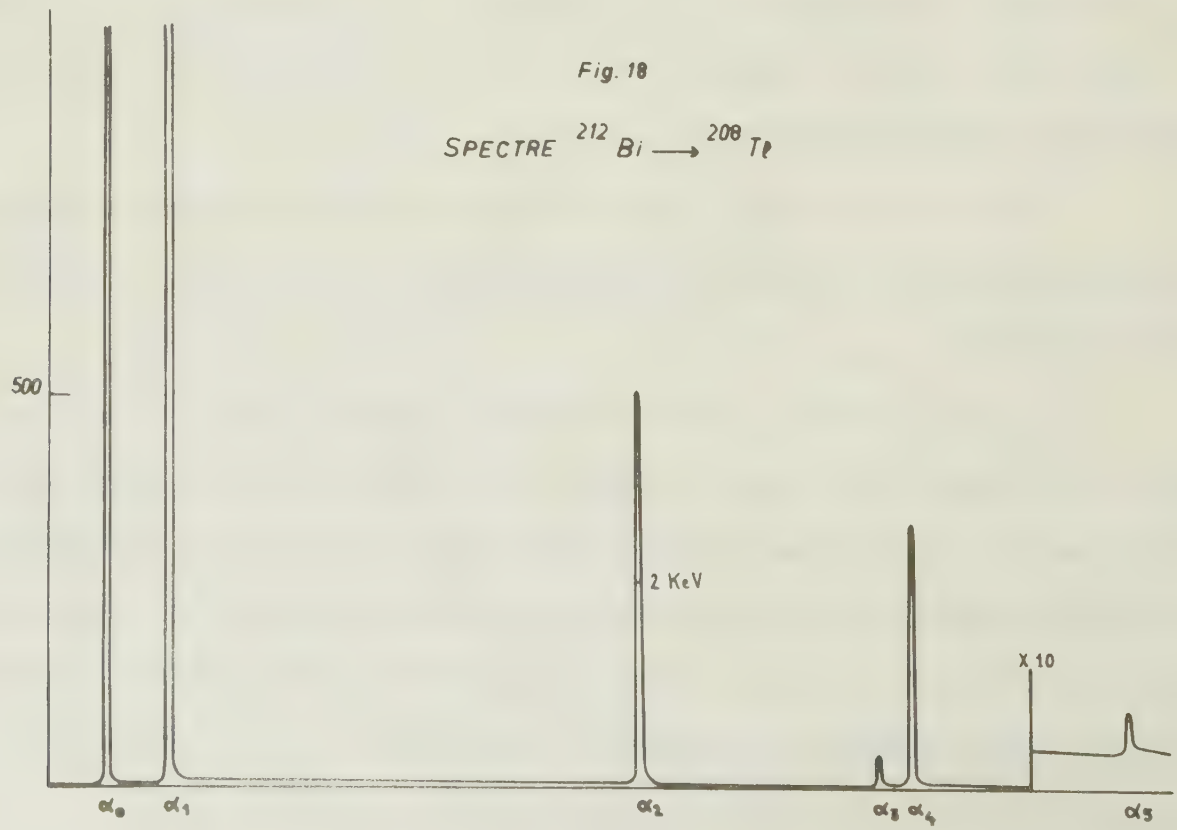
Pour la facilité de tracé des raies de statistique insuffisante, on reporte sur les courbes, à l'abscisse de leur point milieu, la somme des comptages de trois points successifs. Les points sur les courbes sont donc distants de 0,3 mm.

Tous les résultats exposés dans la deuxième partie ont été obtenus à partir du dispositif modifié, dont la mise au point avait demandé de nombreux essais avec des sources de dépôt actif du Th.

Depuis cette époque, des activations ont pu être faites en atmosphère d'argon sur tantale, métal non oxydé en atmosphère neutre, et qui supporte une purification dans le vide plus poussée avant activation. A partir d'une source ainsi préparée, le spectre obtenu pour le dépôt actif du Th est donné dans la figure 18 que l'on pourra comparer à la figure 3. Les points expérimentaux ne sont pas représentés sur la figure car leurs fluctuations sont très faibles.

Fig. 18

SPECTRE $^{212}Bi \longrightarrow {}^{208}Tl$



Source distillée sur support en Ta après activation en atm d'argon.

IIème PARTIE - RESULTATS EXPERIMENTAUX -

L'ensemble des expériences qui vont être décrites ont porté sur les corps de la famille du Radium naturel.

Les émetteurs alpha de la famille du Radium, tous corps de A pair sont les suivants :

^{226}Ra, ^{218}Po (Ra A), ^{214}Po (Ra C') et ^{210}Po, de N et Z pairs.

^{218}At, ^{214}Bi (Ra C) et ^{210}Bi (Ra E) de N et Z impairs.

Ces éléments ont de deux à dix huit nucléons en dehors des couches fermées ; les noyaux d'arrivée se trouvent donc essentiellement dans la zone dite de transition (entre les noyaux sphériques et les noyaux très déformés) et dans la région d'application du modèle particulaire.

I ETUDE DU RADIUM ET DE SES DESCENDANTS A VIE COURTE.

^{226}Ra qui a une période de 1617 ans, donne naissance au Rn, période 3,8125 j, rapidement en équilibre avec le dépôt actif à vie courte. Une pose longue avec une source de Ra, donnera donc, en même temps que les raies de Ra, celles de ses descendants émetteurs alpha.

I.1 Partie expérimentale.

I.1.1 Préparation de la source.

L'activité spécifique d'un corps à vie longue est faible. Il faut donc dans un pareil cas faire un compromis entre la nécessité d'enregistrer un nombre suffisant de particules, et le souci de séparer les raies, la résolution de deux raies voisines en énergie demandant une source peu épaisse. Avec une source de faible intensité spécifique et une pose longue on pouvait espérer avoir une statistique suffisante pour les raies de faible intensité et une largeur de raies permettant par exemple la séparation de Ra α_0 et Ra α_1, d'existences bien connues mais dont la nouvelle expérience donnerait une évaluation précise du rapport des intensités. Une élimination aussi parfaite que possible de Po était nécessaire pour éviter d'une part la contamination du spectrographe par des atomes de recul s'échappant malgré la couverture de la source, d'autre part la contribution de Po, d'énergie supérieure à celle de Ra, au fond continu existant sur les plaques à l'emplacement de Ra. Les conditions dans lesquelles on a opéré ont finalement donné des raies de largeur 15 à 20 KeV et un fond tout à fait négligeable devant Ra α_0.

On est parti d'une goutte de solution de Ra Cl_2 que l'on a volatilisée à partir d'un creuset en tantale sur une feuille mince de pyrex à une température de l'ordre de 1 400°. Un chauffage préalable sous vide à 800° environ a purifié Ra de ses descendants gazeux et volatils Rn, Pb (Ra D) et ^{210}Po. La source de 0,12 μ c (ce qui sur une surface de

0,4 x 4 mm^2 représente environ en Ra Cl_2 10 $\mu g/cm^2$ et un ralentissement possible de 3 KeV) a été ensuite recouverte d'une couche d'aluminium. La formation de Rn durant une pose longue étant une cause de contamination pour le spectrographe (Rn s'échappe malgré la couverture d'Al) la source a été montée dans une capsule fermée par une paroi mince de verre.

La pose longue de deux mois a été suivie de poses plus courtes avec la même source destinées à préciser les intensités ou les énergies.

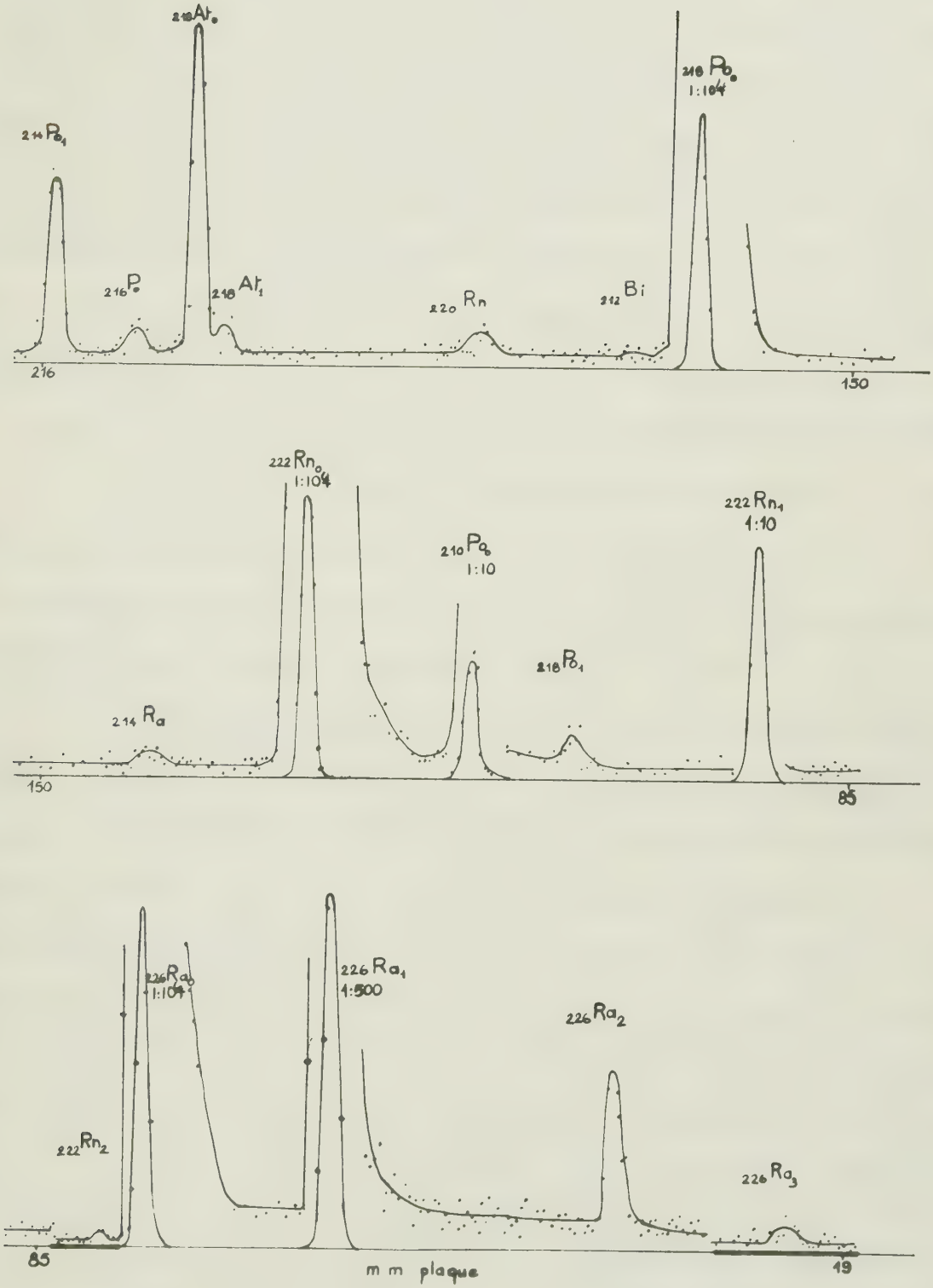
I.1.2 Résultats.

Le spectre obtenu est donné dans la figure 19.

L'interprétation d'un tel spectre suppose l'attribution des raies qui apparaissent après dépouillement de la plaque à une structure fine déterminée.

I.1.3 Définition des raies.

Les raies intenses ne posent pas de problème car leur présence peut être confirmée sur une plaque correspondant à une pose plus courte. Pour les raies faibles, leur intensité est telle qu'elles n'apparaissent que sur la pose principale (pose longue). Il faut donc décider de leur existence à partir de cet unique résultat. Sur un fond continu de valeur moyenne $n \pm \sqrt{n}$, on soupçonnera une raie si un certain nombre de points consécutifs dépasse cette valeur, et ce, sur un intervalle correspondant à la largeur à la base d'une raie dans la même région de la plaque. De plus l'intensité intégrée de la raie, (somme arithmétique du nombre de rayons comptés), compte tenu du fond continu que l'on soustrait, devra représenter au moins une valeur égale à $4\sqrt{n}$, ce qui dans la plupart de nos expériences et compte tenu des fonds observés conduisait à une probabilité d'existence de 99 %. Le cas est plus complexe si une anomalie dans le tracé d'une raie fait supposer le chevauchement de deux raies d'intensités très différentes. On essaie alors de décomposer la raie en deux tracés, mais on est en général très prudent. Ainsi dans le spectre considéré la forme de la raie de ^{210}Po semble peu comparable à celles des raies du spectre de la même région de plaque. On a pensé qu'une partie de ^{210}Po profondément enfoncé par 4



- Figure 19 - Spectre de ^{226}Ra et descendants -

reculs successifs subissait un ralentissement. C'est seulement plus tard, à la suite de l'étude de Ra C, qu'on a pu remarquer que l'anomalie dans la descente de ^{210} Po sur le spectre ici étudié correspondait à une raie de structure fine de Ra C. Et la décomposition en deux tracés, qui avait semblé hasardeuse à partir d'un unique cliché, a pu être faite.

Dans tous les cas, un examen des énergies de corps connus peut amener l'identification de raies à une impureté insoupçonnée dans la solution de départ. Ainsi dans le spectre de la figure apparaissent les raies de ^{224} Ra (Th X) et de ses descendants, isotope codistillé lors de la préparation.

I.1.4 Echelle des énergies.

Les raies apparaissant sur la figure couvrent presque toute la plaque donc, en énergies, un domaine de 3 MeV bien supérieur au domaine où s'applique la formule de la région proche du point focal. ^{214} Po (Ra C') n'est pas enregistré avec le dispositif tel qu'il a été employé. Le point de meilleure focalisation se situe autour de ^{218} Po (Ra A). Le Radium lui-même étant loin de cette zone, il a donc fallu établir, pour la comparaison des intensités et l'évaluation des énergies, une échelle expérimentale.

La coévaporation dans un même creuset d'une solution contenant un mélange de chlorures de ^{226} Ra et ^{224} Ra a fourni une source qui dans une pose auxiliaire a donné des raies couvrant plusieurs MeV. On a pu voir ainsi l'évolution de la forme des raies au long de la plaque et la variation d'angle solide d'arrivée en fonction de l'énergie. Un graphique a été établi à partir duquel ont eu lieu les évaluations pour la famille du Radium en prenant comme repère d'énergie absolue celle de ^{210} Po. (W3)

I.2 Interprétation des résultats : ^{226} Ra.

I.2.1 Historique.

Une raie de stucture fine dans le spectre magnétique du Radium avait été détectée dès 1932 par S. Rosenblum (R10) à la suite de l'étude de Hahn et Meitner sur le rayon-

nement γ du Radium (H3) étude précisée par différents travaux (S1) (V1). Un seul rayonnement γ était alors signalé, γ de 189 KeV correspondant à la raie de structure fine de 185 KeV. Par la suite, dans notre laboratoire et avec le dispositif classique, diverses études, (R7, B4) avaient précisé en énergie et intensité la raie de 185 KeV, tandis que de leur côté Asaro et Perlman (A1) puis Asaro (A2) reprenaient la structure fine de Ra donnant pour toute raie entre 300 et 800 KeV une limite supérieure d'intensité égale à 0,1 %.

D'autre part, Harbottle et al, (H4) confirmant les résultats de Stephens Jr (S2) déterminaient dans le spectre γ de Ra pur étudié à l'aide d'un compteur à scintillations un rayonnement γ de 250 ± 3 KeV et proposaient pour ^{222}Rn, un schéma de désintégration tenant compte de deux γ en coïncidence de 260 et 186 KeV donc un niveau probable de 446 KeV.

L'étude reprise alors à notre laboratoire (W4) donna pour la structure fine du Radium quatre raies visibles sur la figure.

Une étude ultérieure de Stephens et al (S3) devait confirmer ces résultats avec quatre transitions γ en plus de la transition de 186 KeV, deux en coïncidence avec le rayonnement γ de 186 KeV (260 KeV et 420 KeV), une troisième très faible de 450 KeV, enfin une transition de 610 KeV.

I.2.2 Résultats.

Les résultats sont rassemblés dans le tableau ci-dessous :

en KeV	E α	Δ E α	Δ E t	Intensités
Ra_0	(4. 782)	0	0	0,946
Ra_1	4. 599	182,6	186	$5,4\ (\pm 0,1).\ 10^{-2}$
Ra_2	$4.\ 340 \pm 1$	441 ± 2	449	$5,1\ (\pm 0,3).\ 10^{-5}$
Ra_3	$4.\ 189 \pm 5$	593	605	$7\ (\pm \frac{4}{3}).\ 10^{-6}$

I.2 - Tableau 1 - N.B p. 61

La comparaison de poses successives faites dans les meilleures conditions de fond a permis une détermination très précise du rapport des intensités des deux raies α_0 et α_1. En effet ces deux raies, proches en énergie, correspondent à une forme comparable et l'évaluation de l'intensité relative de α_1 n'a donné lieu à aucun arbitraire.

Ra_2 est également déterminée en intensité avec une très bonne précision. Son intensité relative a été évaluée par rapport à Ra_1.

Ra_3 d'intensité intégrée faible, n'apparaissant que sur la pose principale, laisse une plus grande marge d'erreurs.

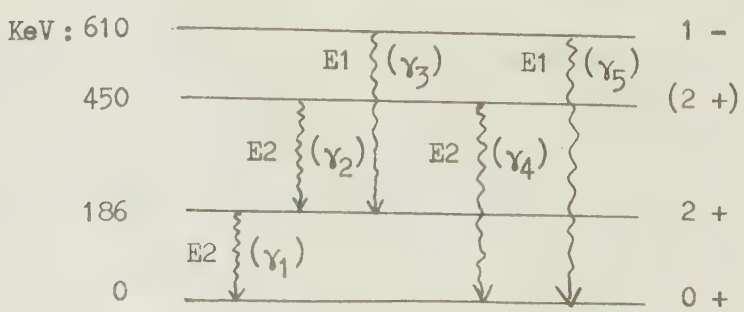
I.2.3 Interprétation.

L'étude par spectromètre γ de Stephens et al a donné les résultats suivants pour les rayonnements : KeV, 186 (γ_1), 260 (γ_2), 420 (γ_3), 450 (γ_4), et 610 (γ_5) :

Energies en KeV	186	260 ± 5	420 ± 5	450 ± 10	610 ± 5
Intensités relatives	1	$2{,}9.\ 10^{-3}$ $\pm$ 20 %	$2{,}1.\ 10^{-4}$	$9.\ 10^{-5}$	$3{,}3.\ 10^{-4}$

- I.2 Tableau 2 -

L'accord entre les énergies des γ trouvés et les différences énergétiques des niveaux α est excellent et permet de proposer le schéma suivant :



- I.2 Schéma -

Toutes les mesures d'intensité γ ont été faites relativement au rayonnement de

186 KeV. Ce rayonnement très intense ne peut servir de base de comparaison que s'il est atténué par l'interposition d'écrans. Pour la transition de 260 KeV, les auteurs ayant utilisé peu ou pas d'absorbant estiment la valeur (qu'ils donnent), exacte à $\pm$ 20 % tandis que l'atténuation importante nécessaire pour γ_3 γ_4 γ_5 peut affecter les valeurs trouvées d'un facteur 2 selon les mêmes auteurs.

La comparaison avec nos résultats se fait en utilisant les coefficients de conversion tirés des tables de Sliv (S3bis) et Rose (R11).

On prendra $\alpha_{tot.} = \alpha_K + \alpha_{L_I} + \alpha_{L_{II}} + \alpha_{L_{III}} + \alpha_{M_I} + \alpha_{M_{II}} + \alpha_{M_{III}}$

	E2 (186)	E2 (260)	E1 (420)	E2 (450)	E1 (610)
$\alpha_{tot.}$	0,72	0,25	$1,7. 10^{-2}$	$5. 10^{-2}$	$8. 10^{-3}$

I.2 - Tableau 3 -

L'application de ces coefficients de conversion aux rayonnements ci-dessus donne les intensités correspondantes, une fois fixée l'intensité de la raie 186 KeV. A partir de nos mesures, du rapport des deux raies α_1/α_o = 5,4 %, on déduit le tableau suivant pour les intensités absolues par désintégration.

	γ_1	γ_2	γ_3	γ_4	γ_5
Int. abs. par α	$3,14. 10^{-2}$	$9. 10^{-5}$	$7. 10^{-6}$	$2,7. 10^{-6}$	10^{-5}

I.2 - Tableau 4 -

D'où les intensités alpha correspondantes :

$$\gamma_2 \ (1 + \alpha_{tot.} \gamma_2) + \gamma_4 \ (1 + \alpha_{tot.} \gamma_4) = 1{,}15. \ 10^{-4} = I \alpha_2$$

$$\gamma_3 \ (1 + \alpha_{tot.} \gamma_3) + \gamma_5 \ (1 + \alpha_{tot.} \gamma_5) = 1{,}7. \ 10^{-5} = I \alpha_3$$

On voit donc qu'il n'y a pas bon accord entre les valeurs des intensités γ données par ces auteurs et les déterminations par spectrographie alpha. Dans notre cas toutefois la détermination de la raie α_2 a été faite avec une très grande précision, et α_3 bien que déduit d'une faible statistique est déterminée à $\pm$ 50 % près en intensité. Il semble donc que les intensités relatives données par les auteurs soient surestimées.

I.2.4 Discussion.

^{222}Rn se classe parmi les noyaux pairs pairs, dans la zone intermédiaire entre les noyaux sphériques (au voisinage des couches fermées), et les noyaux déformés sphéroïdaux, zone appelée par G. Scharff Goldhaber "région proche harmonique" (S4). Dans cette zone se remarque une rupture de continuité dans la régularité des propriétés observées pour les éléments lourds ($A > 226$).

Wilets et Jean d'une part (W5), Marty (M1), puis Davydov et Felipov (D1), traitant du problème de la violation de symétrie axiale dans les noyaux pairs, ont montré que, lorsqu'augmente la déformation, des niveaux de vibrations correspondant à une instabilité de la déformation γ, peuvent être excités à un niveau d'énergie plus bas. Ces familles de vibration ont un premier niveau de spin 2, niveau habituellement désigné par 2 prime, (2'), dont le rapport d'énergie avec le premier niveau 2^+ varie de ∞, pour un paramètre γ de déformation = 0), à 2 pour un γ de 30°. Ceci correspond pour le noyau au passage de l'ellipsoïde allongé de révolution à 3 axes de symétrie ($\gamma = 0$) à l'ellipsoïde aplati à 2 axes de symétrie ($\gamma = \frac{\pi}{3}$ ramené par symétrie à $\gamma = 30°$).

Dans notre cas, $\frac{E_2'}{E_2} = 2{,}41$ ce qui correspond à γ 25° et serait l'amorce d'une

famille de vibrations avec un deuxième niveau 4^+ à 540 KeV environ et 3^+ à 675 KeV. Ces niveaux n'ont pas été observés en spectrographie alpha et on n'a pas trouvé non plus de rayonnement γ. Ajoutons de plus que dans l'hypothèse de Davydov et Felipov, à une déformation γ de 25° correspond pour le rapport $\frac{B\,(E2)\quad 2' \longrightarrow 2}{B\,(E2)\quad 2' \longrightarrow 0}$, rapport des probabilités réduites de de transitions entre les niveaux $2' \rightarrow 2$ et $2' \rightarrow 0$, une valeur 20,6, ce qui ne correspond pas à la faible intensité donnée par Stephens et al (S3) pour la transition γ_4, transition que ces auteurs considèrent d'ailleurs comme seulement probable. La valeur déduite donnerait un facteur 460. On ne peut donc pas expliquer le niveau Ra_2 avec une interprétation théorique simple. Si on propose pour ce niveau un spin 4^+, la nature des transitions entre les différents niveaux ne change pas. On peut penser à un deuxième niveau de la famille de rotation amorcée par le niveau 186 KeV, mais dans ce cas le rapport des énergies des deux niveaux est trop faible et trop éloigné de la valeur du rapport limite admissible pour une famille de rotation (2,8 à 2,9).

En l'absence de mesure de correlations angulaires γ_2, γ_1 ou α, γ_2 qui donneraient une distribution angulaire caractéristique de l'une ou l'autre des hypothèses, (mais seraient difficiles à partir de rayonnements γ aussi peu intenses), on suppose que le spin est 2^+ pour le second niveau en accord avec Stephens et al (S3) et Foucher (F1).

Le niveau de 610 KeV, dont l'intensité alpha est assez peu précise, mais ne pourrait cependant être égale à celle déduite des mesures γ, a le spin 1^- ainsi que le veulent la transition directe γ_5 avec le niveau fondamental, et la valeur comparable des transitions γ_3 et γ_5 auxquelles on suppose la même nature. Ce résultat est d'ailleurs en accord avec la systématique des niveaux 1^- des isotopes de Ra et Th de cette région (S5).

N.B Les énergies α données entre parenthèses dans les tableaux, correspondent à des déterminations antérieures adoptées dans la deuxième partie de ce travail comme bases de l'échelle d'énergie.

I.3 ^{222} Rn.

Le Rn se désintègre en donnant naissance à ^{218} Po.

Une étude par scintillateur du rayonnement γ de ^{222} Rn (M2) avait établi l'existence d'un rayon γ de 510 $\pm$ 2 KeV.

Nos résultats confirment ce niveau avec une intensité en bon accord et nous lui attribuons le spin 2 $^{+}$ par analogie avec les niveaux des Po avoisinants.

Un groupe très faible devant Ra_o (excès de $4\sqrt{n}$ sur le fond) pourrait correspondre à un deuxième niveau excité de ^{218} Po, pour lequel on n'a pas trouvé de γ. Les auteurs précités donnent comme limite d'intensité pour un niveau d'excitation d'énergie plus élevée, 1/10e de la radiation qu'ils trouvent. Ceci n'est pas en contradiction avec nos résultats. Si on prend un coefficient de conversion égal à $5.\ 10^{-3}$, (en prenant le niveau de 675 KeV comme niveau 1 $^{-}$ ce qui est le plus plausible), pour un γ de 675 KeV on trouve une intensité γ de $\sim 5.\ 10^{-6}$, ce qui est nettement inférieur aux possibilités décrites.

	Energie en KeV	Δ E α	Δ E t	Intensités
Rn_o	(5. 490)	0	0	# 1
Rn_1	4. 987 $\pm$ 1	503	512	$7{,}8.\ 10^{-4}$
Rn_2	4. 827 $\pm$ 4	663	675	$\sim 5.\ 10^{-6}$

I.3 - Tableau 1 -

I.4 ^{218} At.

Ce corps dérive d'un faible embranchement β dans ^{218} Po et a une période de 1,3 sec. Il donne naissance par émission α à ^{214} Bi et β à ^{218} Rn. Son énergie avait été

déterminée à partir du parcours comme étant 6,7 MeV. (K1)(W6).

L'expérience présente a montré à 44 KeV de la raie principale un petit groupe α que l'on peut attribuer à ^{218} At.

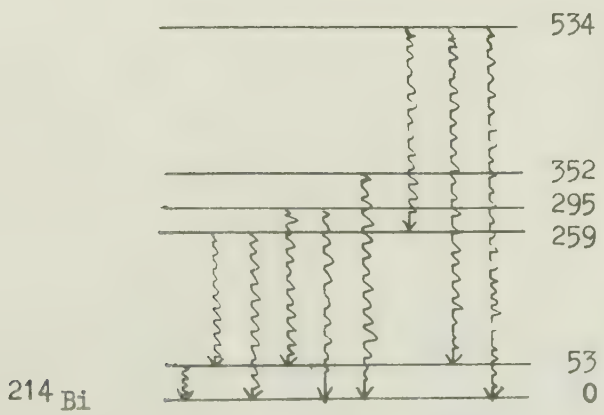
Notons que le doute aurait pu subsister au sujet de l'attribution de cette raie soit à ^{218} At soit à ^{214} Po. Mais on n'a pas retrouvé cette raie dans le spectre de ^{214}Bi ce qui confirme bien qu'elle appartient au spectre de ^{218} At. Les résultats sont donc les suivants :

	E α KeV	$\triangle$ E α	$\triangle$E t	I
^{218} At_o	6. 697	0	0	0,94
^{218} At_1	6. 653	44	45	0,06

I.4 - Tableau 1 -

Les intensités I de ce tableau sont déduites du spectre α. L'intensité globale (At_o + At_1), correspond pour l'embranchement β ^{218} Po ⟶ ^{218} At, à une valeur 1,85. 10^{-4}.

^{218} At donne par émission α ^{214} Bi pour lequel de nombreuses études ont précisé les transitions γ. En particulier, Mladjenovic et al (M3) et K.O Nielsen et al (N2) ont proposé le schéma suivant :

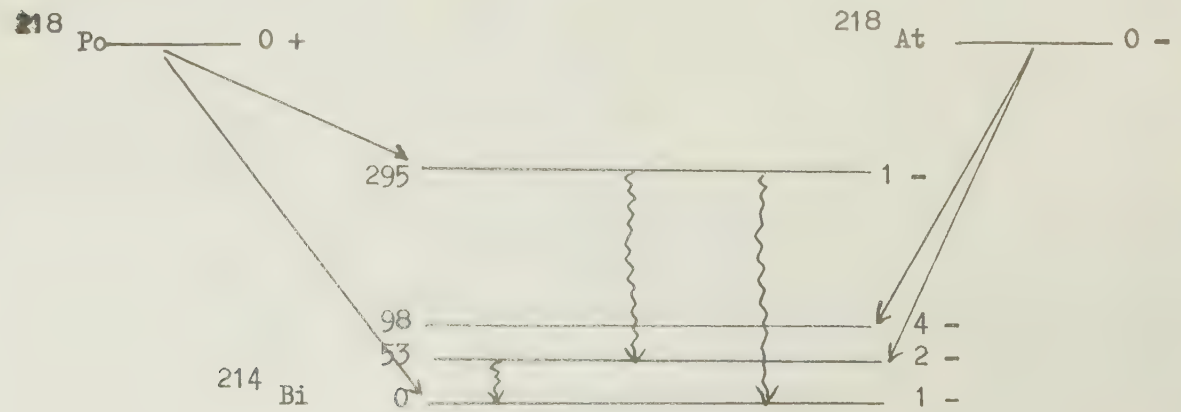


I.4 - Schéma 1 -

Ces auteurs ont montré que les transitions 53, 242, 295 et 352 KeV sont des transitions M1 presque pures. Le niveau 295 KeV a donc le même spin que l'un des niveaux 53 ou 0 ; or le niveau 295 KeV a le spin 0^- ou 1^-, le rayonnement β correspondant ayant log ft = 5,2. De plus des mesures de correlations angulaires de Demichelis et Radicati (D2) entre le spectre β aboutissant au premier niveau excité de ^{214} Po et le rayonnement γ de 610 KeV qui lui succède ont éliminé à priori pour l'état fondamental de ^{214} Bi tous les états autres que 1^- et 2^-.

Le niveau 53 KeV ou le niveau fondamental ont donc le spin 1^-. Or le niveau 53 KeV a un degré d'interdiction de plus que le niveau fondamental (et non pas un degré de moins) ; en effet on n'a pas observé de β aboutissant au niveau de 53 KeV et pas non plus de coïncidence β γ à partir de ce niveau. Donc le 53 KeV a le spin 2^- et le niveau fondamental le spin 1^-.

Or le spectre alpha de ^{218} At ne fait pas apparaître le niveau de 53 KeV. L'intervalle entre les deux raies trouvées ne peut en aucun cas laisser une marge d'incertitude aussi grande. On en conclue que l'une des transitions alpha, soit vers le niveau fondamental soit vers le 53 KeV est interdite. Cette interdiction suppose donc un spin 0 pour ^{218} At puisque les deux premiers niveaux de ^{214} Bi ont les spins 1^- et 2^-. Le modèle de particules indique clairement pour ^{218} At une configuration à parité négative, le seul choix étant ici $(h_{9/2})^3_P \ (g_{9/2})^2_N$ pour les nucléons impairs. Ce qui entraîne la proposition de schéma suivante :



I.4 - Schéma 2 -

Ajoutons que l'étude du spectre α de ^{214}Bi donne pour les deux premiers niveaux de ^{210}Tl des intensités inversées, ce qui suppose presque inévitablement pour ^{214}Bi, le spin 1$^-$ pour le niveau fondamental ainsi qu'on le verra plus loin à propos de l'établissement des schémas de ^{214}Bi et ^{212}Bi.

Dans ces conditions ^{218}Po $\beta \rightarrow$ ^{218}At donne pour $E\beta \simeq 0{,}24$ MeV, $I = 0$, oui, log ft 6,2 ce qui est une valeur possible et comparable aux rares cas connus de la catégorie $0^+ \longrightarrow 0^-$ pour lesquels log ft peut varier dans de larges proportions.

I.5 ^{218}Po (Ra A).

^{218}Po se désintègre en donnant naissance à ^{214}Pb (Ra B) magique en protons et avec 6 neutrons en plus de la couche fermée. Un groupe situé entre Po_1 et Rn_1 ne peut s'expliquer que comme structure fine de ^{218}Po. La différence énergétique avec Ra A_o, 837 KeV, est tout à fait compatible avec un premier niveau d'excitation de Po. Toutefois le rayonnement γ n'a pas été trouvé.

Les résultats sont donc :

en KeV	E α	$\triangle$ E α	$\triangle$ E t	I
$^{218}Po_o$	(6. 002)	0	0	1
$^{218}Po_1$	5. 181 ± 2	821	837	$1{,}1 \cdot 10^{-5}$

I.5 - Tableau 1 -

I.6 ^{214}Po (Ra C').

Avant ^{218}At, un groupe intense ne peut être attribué qu'à ^{214}Po. L'évaluation de son intensité et de son énergie aurait demandé pour plus de précision la présence de ^{214}Po (Ra C'), non enregistré sur nos plaques. On a donc pris comme valeur d'énergie pour Ra C' celle déterminée en valeur absolue par Rytz (R4), 7.687 KeV, et donné l'intensité relative de la raie en fonction de ce qu'aurait été l'intensité enregistrée pour Ra C' dans les conditions de l'expérience, compte tenu de la variation d'angle solide au long de la plaque décrite dans la première partie.

en KeV	E α	△ E α	△ E t	I
$^{214}Po_o$	(7. 687)	0	0	1
$^{214}Po_1$	6. 906	781	796	10^{-4}

I.6 - Tableau 1 -

I.7 Conclusions.

La pose a donc permis de préciser les structures fines de ^{226}Ra, ^{222}Rn, ^{218}At, ^{218}Po et ^{214}Po. ^{210}Po volontairement éliminé lors de la préparation de la source, s'est reformé durant la pose longue. La raie de ^{210}Po sur le spectre de la figure 19 page 55, correspond à une source enfoncée dans le support par suite des reculs successifs et sa forme est donc modifiée. D'autre part, les raies de ^{214}Bi (Ra C) sont masquées par le Rn d'énergie très voisine si bien qu'une pose de dépôt actif a été nécessaire pour arriver à des conclusions définitives.

II ÉTUDE DE ^{210}Po.

II.1 Historique.

^{210}Po émetteur α pur, le dernier de la filiation dans la famille du Radium est l'un des radioéléments le plus utilisé et le plus étudié. ^{206}Pb, produit de la désintégration de ^{210}Po, peut également être atteint par émission β à partir de ^{206}Tl et par capture à partir de ^{206}Bi. Si l'étude à partir de ^{206}Tl est difficile à cause de la faiblesse de l'embranchement, des études nombreuses ont permis à l'aide de ^{206}Bi, l'établissement du schéma des niveaux de ^{206}Pb (A3). Des mesures de correlations angulaires α γ (D3) puis de spectroscopie du rayonnement γ de ^{210}Po (H5) ont précisé le premier niveau de 803 KeV alors que les tentatives de mise en évidence du groupe de structure fine correspondant à ce niveau à partir de ^{210}Po avaient échoué.

Remarquons que la précision de l'intensité de ce niveau par des mesures α peut être intéressante alors que la production de ^{210}Po est réalisée couramment et que ce corps émetteur α pur, dont aucun descendant ne vient perturber le spectre γ, peut servir d'étalon de rayonnement gamma. De plus, l'émission α de ^{210}Po fait appel à 2 nucléons à l'intérieur de la couche fermée et 2 nucléons à l'extérieur cequi est une particularité intéressante dans la théorie de la préformation de la particule α.

II.2 Préparation de la source.

Pour les raisons exposéesdans la première partie, et essentiellement pour disposer d'un produit à évaporer suffisamment intense, on a procédé par électrolyse (B5). Remarquons qu'on pouvait prévoir pour Po une source intense, la quantité de matière présente demeurant faible à cause de la période relativement courte (138,4 j).

La figure 20 page 68 donne le schéma du récipient à électrolyse.

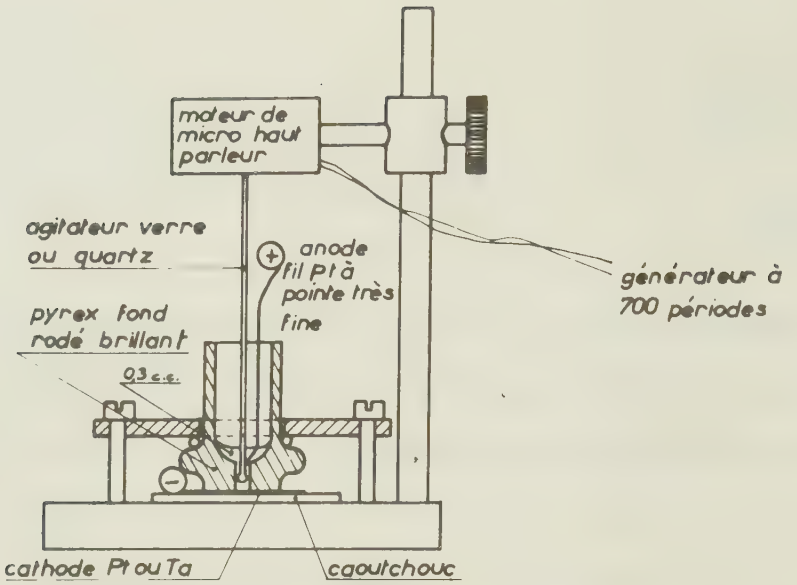
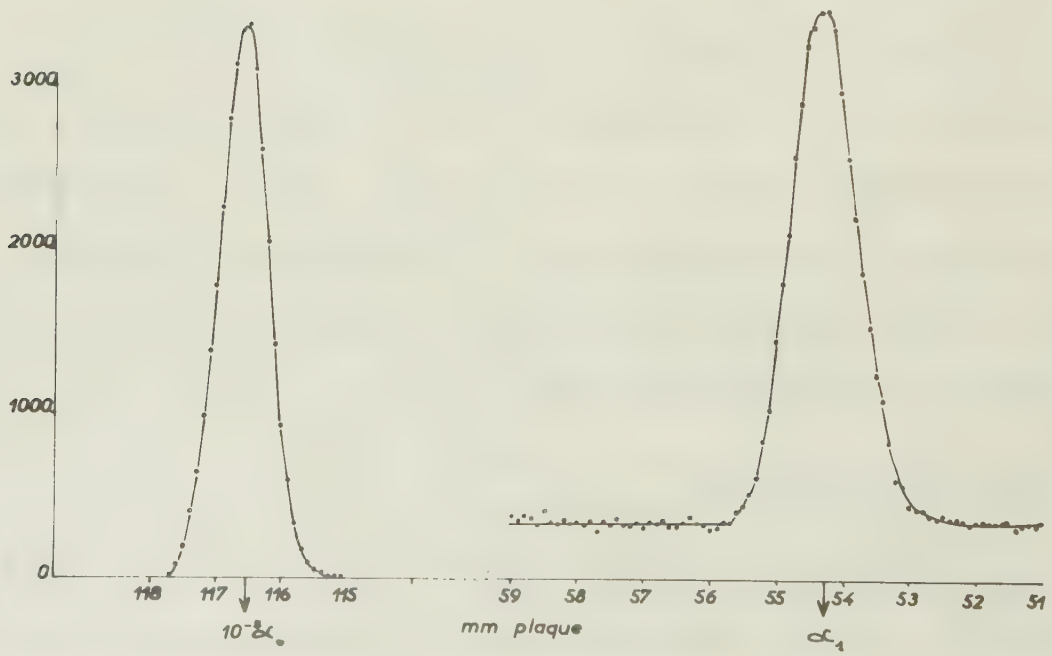


Fig. 20 Récipient à électrolyse



- Figure 21 - Spectre de ^{210}Po -

On a concentré la quantité de Po dans 0,3 cm^3 de solution nitrique 0,3 N. La cathode constituée par une feuille de platine de 0,03 mm d'épaisseur recueille Po d'un seul côté et sur une surface de 8 mm^2 environ. L'autre électrode est constituée par un fil de platine très fin. Le courant de 30 à 40 μA, avec agitation de la solution, a permis, au cours d'une électrolyse longue, d'obtenir un rendement excellent ($>$ 99,5 %).

La source a été obtenue par chauffage à 900° environ de la feuille cathode formée en creuset de manière habituelle. La source recouverte d'une mince couche d'aluminium a été ensuite enfermée dans une capsule à parois minces de verre pour éviter les contaminations du spectrographe par les parcelles détachées de la source. Po forme des composés volatils dont la dispersion dans le spectrographe est une cause de contaminations, ce qui peut expliquer partiellement les échecs successifs dans l'étude de la structure fine de Po. Pour l'expérience ici décrite, des mesures précises en activité α, de la source avant et après la pose, ainsi que des contrôles de la capsule enfermant la source, ont montré qu'il n'y a pas eu de départ de matière active.

L'intensité de la source utilisée était de l'ordre de 500 μ c. Une première pose de 10 jours a donné la courbe de la <u>figure 21</u> page 68 sur laquelle l'intensité de la raie principale a été déduite d'une pose de 15 secondes avec la même source, immédiatement après la première pose.

II.3 <u>Résultats et interprétation</u>.

Pour l'évaluation du rapport des intensités on a utilisé la courbe expérimentale établie pour le Ra en tenant compte pour corriger le rapport de durée des deux poses, de la décroissance de la source durant la pose longue. Les résultats sont dans le tableau :

en KeV	E α	$\triangle$ E α	$\triangle$ E t	I
^{210}Po α_0	(5. 305)	0	0	1
α_1	4. 518,3	786,7	802	1,07. 10^{-5}

II.3 - Tableau·1 -

Les limites d'erreur tiennent compte de l'imprécision sur le rapport de durée des poses, le temps de la pose courte de 15 sec étant mesuré avec une imprécision de 1 %. De même la correction d'angle solide entraîne une incertitude de 0,5 %.

La plaque correspondant à la première pose n'a pas été entièrement dépouillée mais un examen visuel apprécié dans des conditions très favorables de fond (absence de fond continu dû à un descendant) montre qu'il n'y a pas au delà de α_1 de raie d'intensité relative supérieure à $2.\ 10^{-6}$.

L'expérience précise donc l'intensité de la raie de structure fine α, son énergie s'accordant avec celle déterminée par électrons de conversion. La comparaison avec les différentes mesures directes des intensités γ semble montrer que ces valeurs sont en général surestimées (R12) (N2bis).

III ÉTUDE DE ^{210}Bi.

III.1 Etudes antérieures.

^{210}Bi (Ra E) se désintègre par émission β pour donner naissance à ^{210}Po. En 1947, cependant, Broda et Feather (B6) avaient montré qu'il était possible, à partir de ^{210}Bi, d'isoler ^{206}Tl de période 4,2 mm. La présence de ^{206}Tl dans une proportion de 1 à $10.\ 10^{-7}$ supposait un faible embranchement α dans Ra E. Une détermination plus récente donnait comme valeur $1,7.\ 10^{-6}$ (F2) mais le rayonnement alpha n'avait pas encore été étudié par suite de sa très faible intensité vis à vis de ^{210}Po se formant dans une source de Ra E pur.

III.2 Préparation de la source.

Le problème de la préparation d'une source en vue de préciser un spectre alpha de l'ordre de 10^{-6} en intensité, (alors que l'émission β à 100 % donne naissance à ^{210}Po),

est très particulier et a fait l'objet d'une longue étude préliminaire. Il fallait en effet, sur la base des déterminations citées dans le paragraphe précédent "voir" à 300 KeV environ de Po une raie d'intensité 10^{-6}. L'ensemble des purifications chimiques devait éliminer d'une part les impuretés inconnues présentes dans la solution (fournie par le Radio Chemical Center of Amersham), d'autre part Po formé entre la préparation de la source à Harwell et le moment où nous en disposions.

Po non éliminé par voie chimique, et Po reformé dans Ra E pur obtenu par électrolyse entre la fin de l'électrolyse et l'évaporation, devaient être éliminés par chauffage préalable du creuset.

Enfin la source une fois prête devait vieillir le moins possible ce qui supposait une grande rapidité de manoeuvre entre la préparation de la source et le début de la pose.

III.2.1 Purifications chimiques.

La solution mère, évaporée à sec, laissait un résidu d'impuretés évalué à plusieurs milligrammes. Le résidu sec, remis en solution avec H Cl 0,03 N, a été agité avec un volume égal de solution chloroformique de dithizone à $4.\ 10^{-4}$ M. En effet, la dithizone forme avec Po et Bi des complexes solubles dans le chloroforme et stables dans un intervalle de pH déterminé (B7). L'agitation permet le passage de Po et Bi dans la solution organique et des mesures d'activité des deux phases lors de la décantation contrôlent l'extraction. La solution organique une fois décantée est lavée avec un faible volume de H Cl 0,03 N pour rassembler les résidus de solution aqueuse. Cette première opération est destinée à séparer de Po et Bi qui se retrouvent en phase organique, les impuretés dont les ions métalliques ne donnent pas de complexes avec la dithizone et qui resteront en phase aqueuse.

Les opérations suivantes auront pour but de séparer Po de Bi, pour éliminer au maximum Po présent dans la solution utilisée.

La solution organique est donc agitée mécaniquement durant 5 minutes avec une

solution chlorhydrique 0,5 N. Ces conditions de pH assurent le retour de Bi en solution aqueuse et laissent Po dans la solution organique. On a opéré avec une solution chloroformique de dithizone 4. 10^{-4} M ; en effet une série d'essais préliminaires avait montré, que, pour [illegible] solution aqueuse donnée, l'augmentation à 4. 10^{-4} M de la concentration de dithizone per[illegible]t en une seule opération d'obtenir le même resultat que trois extractions avec une concentration 10^{-4} M. Cette variation du coefficient d'extraction avec la concentration de l'agent complexant est d'ailleurs connue, et fonction de la concentration en ions H^+ dans la phase aqueuse (H2 Ch. XXI).

Toutes les séparations ont été faites à partir de solutions chlorhydriques, de préférence aux solutions nitriques éliminées chaque fois qu'on pouvait le faire dans les préparations chimiques, pour les raisons données dans la première partie.

La solution de retour lavée par une série d'agitations successives avec de la dithizone d'abord, du chloroforme ensuite pour éliminer les dernières traces de dithizone, a été évaporée à sec pour contrôler l'élimination de matière. La purification en métaux étrangers n'ayant pas semblé suffisante, (produit visible à l'oeil par évaporation sur un récipient en quartz transparent et évalué à quelques μg), on a repris le résidu par H Cl 0,03 N et recommencé les purifications.

Le retour de Ra E est alors assuré en solution chlorhydrique 0,5 N plusieurs fois agitée avec une solution de dithizone pour éliminer à nouveau Po formé durant la série des opérations.

L'instant du dernier lavage avec la dithizone a pu être considéré comme proche du temps t = 0 de croissance de Po dans la solution de Ra E. Enfin un dernier lavage avec du chloroforme a été suivi d'une évaporation à sec de contrôle laissant un résidu très faible.

III.2.2 Electrolyse et distillation.

Le résidu repris par 0,3 à 0,4 cm^3 H N O_3, 0,04 N a constitué la solution d'électrolyse.

L'électrolyse a été faite dans un récipient analogue à celui qui avait servi (p.68) pour ^{210}Po. Le choix de la cathode s'est porté sur le tantale à la suite d'un essai de préparation antérieur. En effet, la purification préalable à la distillation de Ra E, par préchauffage à 4 ou 500° d'un creuset en Pt avait conduit aux conclusions suivantes : l'élimination de Po n'est pas complète par suite sans doute de formation d'un composé Po Pt dont la tension de vapeur est inférieure à celle de Po. Par contre le préchauffage à 500° provoque un début de départ de Ra E.

Donc à partir de Pt, les conditions de purification et rendement sont défavorables.

A partir de Ta, le préchauffage élimine la totalité de Po sans perte notable en Bi qui distille vers 1000°.

L'obtention de Ra E par électrolyse en solution nitrique avait été essayée par différents auteurs et sur différents métaux. En particulier Haïssinsky et al (H6) avaient par cette méthode obtenu sur Pt des sourcesde 50 mc/mm^2 avec rendement de 80 à 90 % après une électrolyse de 3 h.

Des essais préliminaires nombreux ont permis de constater que, pour un dépôt cathodique sur tantale :

- alors qu'on opérait habituellement à chaud, le passage de 75° à 45° puis 20° C. (t ordinaire) entraîne, à acidité et agitation constantes, une nette augmentation du rendement d'électrolyse.

- à température ordinaire, la diminution d'acidité de la solution nitrique d'électrolyse de 0,3 N à 0,08 N puis 0,04 N améliore le rendement en fonction du temps.

- à température ordinaire, avec une solution 0,04 N, le courant optimum d'électrolyse se situe aux environs de 200 μ A (ce qui correspond à une densité de courant cathodique de l'ordre de 2 mA/cm^2).

Enfin dans les meilleures conditions précisées par ces essais, le remplacement de l'agitation mécanique de la solution par une agitation BF à 800 périodes a permis d'atteindre en 10 minutes, avec un courant de 250 μ A un rendement de 75 %. Cette agitation violente [illegible] être le facteur prépondérant, les autres (intensité de courant, acidité, etc...) étant peu critiques).

Ajoutons que l'arrêt de l'électrolyse est opéré, sans interruption de la tension, par prélèvement progressif et remplacement de la solution d'électrolyte par la même quantité d'eau distillée, et ceci pour éviter une dissolution du dépôt au moment de l'arrêt de courant.

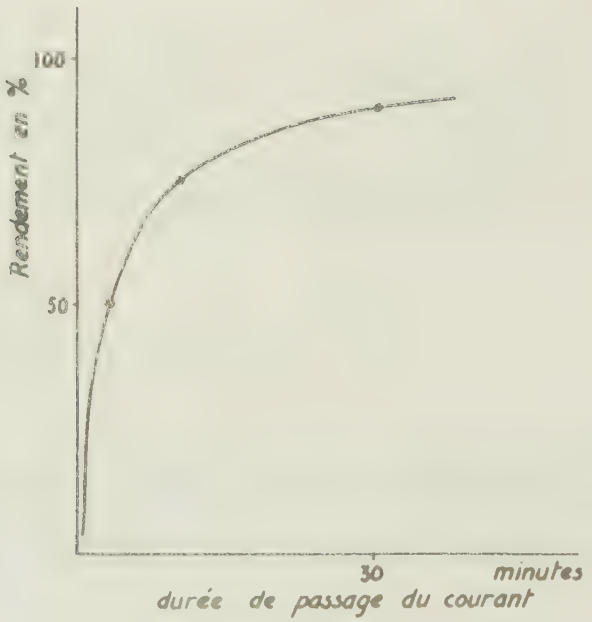


Fig. 22 Courbe d'électrolyse de RaE

La figure 22 reproduit une courbe de contrôle de rendement d'électrolyse lors d'un essai précédant l'expérience définitive. A température ordinaire, avec une acidité 0,04 N nitrique et une agitation BF à 800 périodes, le rendement est de 50 % dès 3 minutes

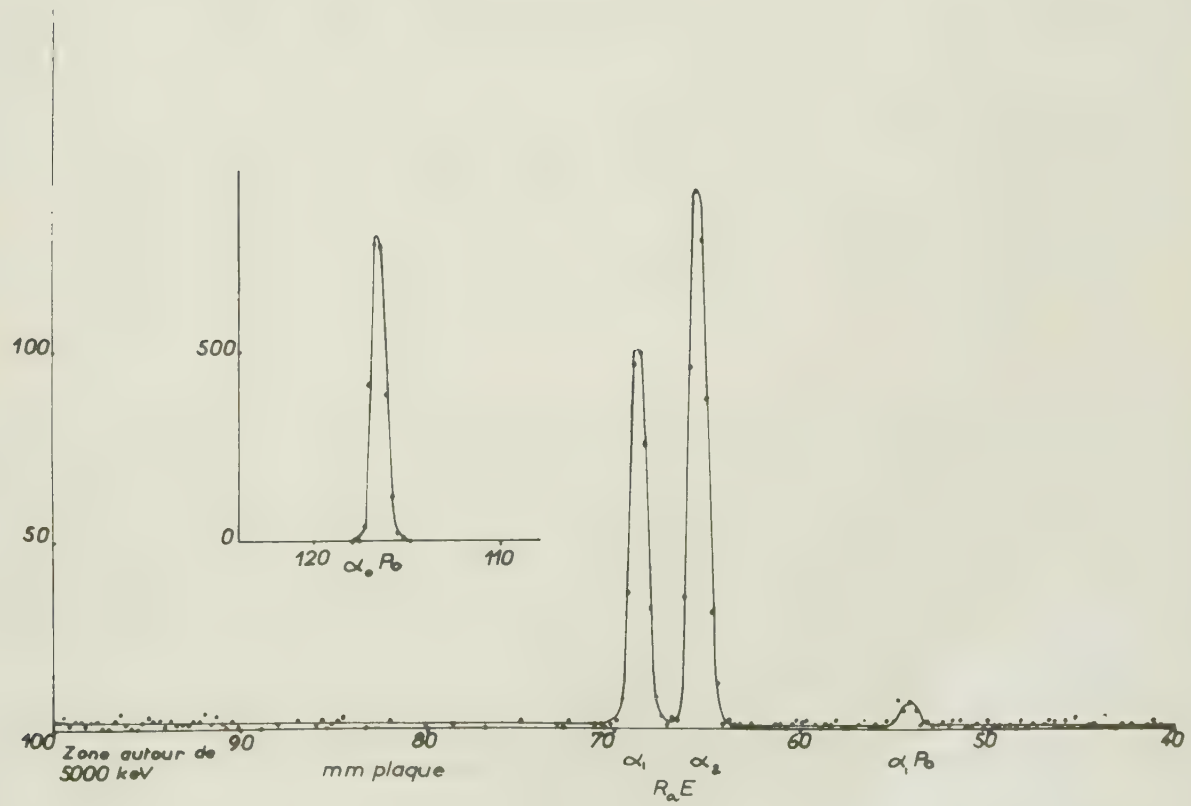
de passage de courant.

On a obtenu, à partir du dépôt électrolytique invisible, sur feuille de verre de 30 μ g environ, une source représentant 1,5 millicurie en Ra E.

L'ensemble des purifications chimiques représente une perte de 50 % par rapport à la quantité initiale. L'électrolyse a épuisé la solution à 95 % en Ra E mais le rendement d'évaporation est toujours mauvais pour le bismuth.

III.3 Poses et résultats.

La courbe obtenue est donnée dans la figure 23.



- Figure 23 - Spectre de ^{210}Bi -

Cette courbe correspond à une pose de 22 h avec la source fraîchement préparée. Une pose courte de 1 min. a précisé l'intensité absolue de ^{210}Po (qui a servi également de repère pour les énergies). Enfin une pose longue ultérieure avec la même source a permis de voir que l'intensité des raies obtenues décroît bien avec la période de Ra E ce qui permet sans ambiguité leur attribution.

La courbe reproduite montre deux raies correspondant à Ra E.

III.3.1 Evaluation des énergies.

La pose courte a permis de compter la raie de Po et de déterminer son sommet dans les mêmes conditions que la pose de 22 h. La fixation des énergies, compte tenu des déterminations faites pour la pose de Ra et descendants, donne pour :

Ra E	α_1	:	4.685 KeV
Ra E	α_2	:	4.649 KeV

(en prenant pour Po : 5.305 KeV.)

III.3.2 Intensité.

La première pose donne deux raies pour Ra E dont on évalue les intensités absolues en tenant compte de la faible variation d'angle solide le long de la plaque. La valeur de l'embranchement α correspondant à la somme des intensités intégrées des raies est calculée à partir de l'intensité de Po. Sur la première pose, Po, beaucoup trop intense n'a pu être compté. Il l'a été sur la pose de 60 sec qui suit la première.

La loi de croissance de Po dans Ra E est :

$$I_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} \left(e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_1 t}\right) \quad (1)$$

avec pour Ra E $I_1 = \rho\, e^{-\lambda_1 t}$ où ρ représente le facteur d'embranchement d'émission α.

On a pris $\lambda_1 = \lambda_{Ra\ E} = 5{,}78.\ 10^{-3}$ heures^{-1}

$\lambda_2 = \lambda_{Po} = 2{,}08.\ 10^{-4}$ heures^{-1}

et dans la formule (1), t est compté à partir du moment fictif où la quantité de Po est nulle. Ce moment est déterminé à l'aide de deux mesures faites au compteur α avant et après la pose.

Les intensités intégrées des raies de Ra E et Po sont $\int_{t_1}^{t_2} I_1 dt$ pour la pose où l'on compte Ra E et $\int_{t_3}^{t_4} I_2\ dt$ pour la pose où l'on compte Po, d'où l'on déduit le facteur d'embranchement.

Les résultats numériques sont :

Emetteur	E α (KeV)	$\triangle$ E α	$\triangle$ E t	I
^{210}Bi α_1	4.685	0	0	$0{,}5.\ 10^{-6}$
α_2	4.649	36	~ 37	$0{,}76.\ 10^{-6}$

IV ÉTUDE DE ^{214}Bi (Ra C).

IV.1 Résultats antérieurs.

Seuls Lord Rutherford et al en 1933 (R13), avaient établi par spectrographie magnétique le spectre α de Ra C avec deux raies d'intensités respectives : 0,94. 10^{-4} et 1,13. 10^{-4} (intensité globale 2,07. 10^{-4}), et des énergies α : 5,505 MeV et 5,444 MeV.

L'étude n'avait pas été reprise depuis ; les raies de Ra C se situant à proximité et de part et d'autre de la raie principale de Rn, il faut éliminer tout dispositif où intervient Rn pour obtenir une intensité élevée en Ra C. A partir du dépôt actif de Ra, on dispose de peu de temps pour la préparation d'une source soignée et on est gêné par la présence de Ra C' émetteur α qui dérive de Ra C par émission β et dont la queue introduit un fond gênant.

IV.2 Préparation de la source.

L'appareil avec lequel on a travaillé est donné dans la figure 24. Une tension de 4 kV est appliquée à une feuille de platine ou tantale fermant le récipient à activation dans lequel on introduit Rn en cassant l'ampoule. Après une activation de quelques heures, on obtient par volatilisation sur feuille de verre une source de dépôt actif de Ra (Ra B + C) que l'on recouvre d'une légère couche d'aluminium pour éviter les pertes par recul.

Rn est ensuite récupéré. Après avoir fait le vide à l'aide de la pompe, et, par l'intermédiaire des robinets, isolé le récipient, Rn repasse dans l'extrémité inférieure de l'appareil où il est ensuite condensé dans l'air liquide et prêt pour une nouvelle utilisation.

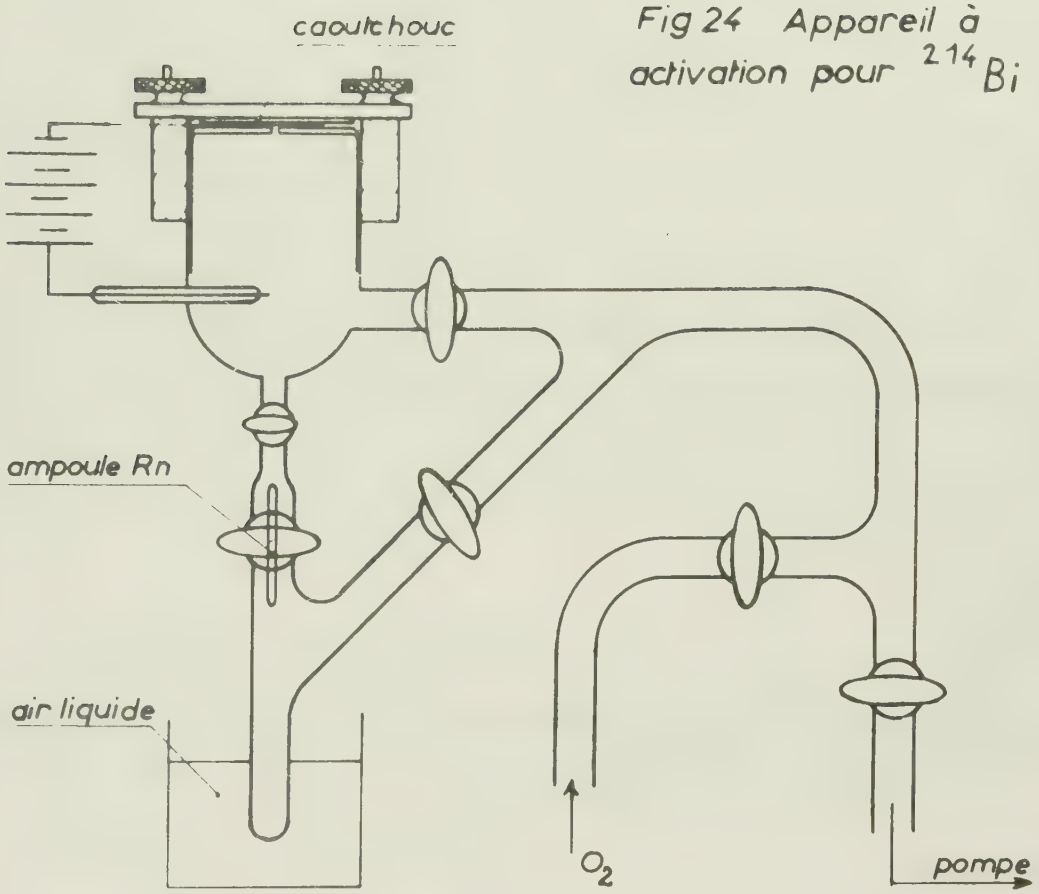


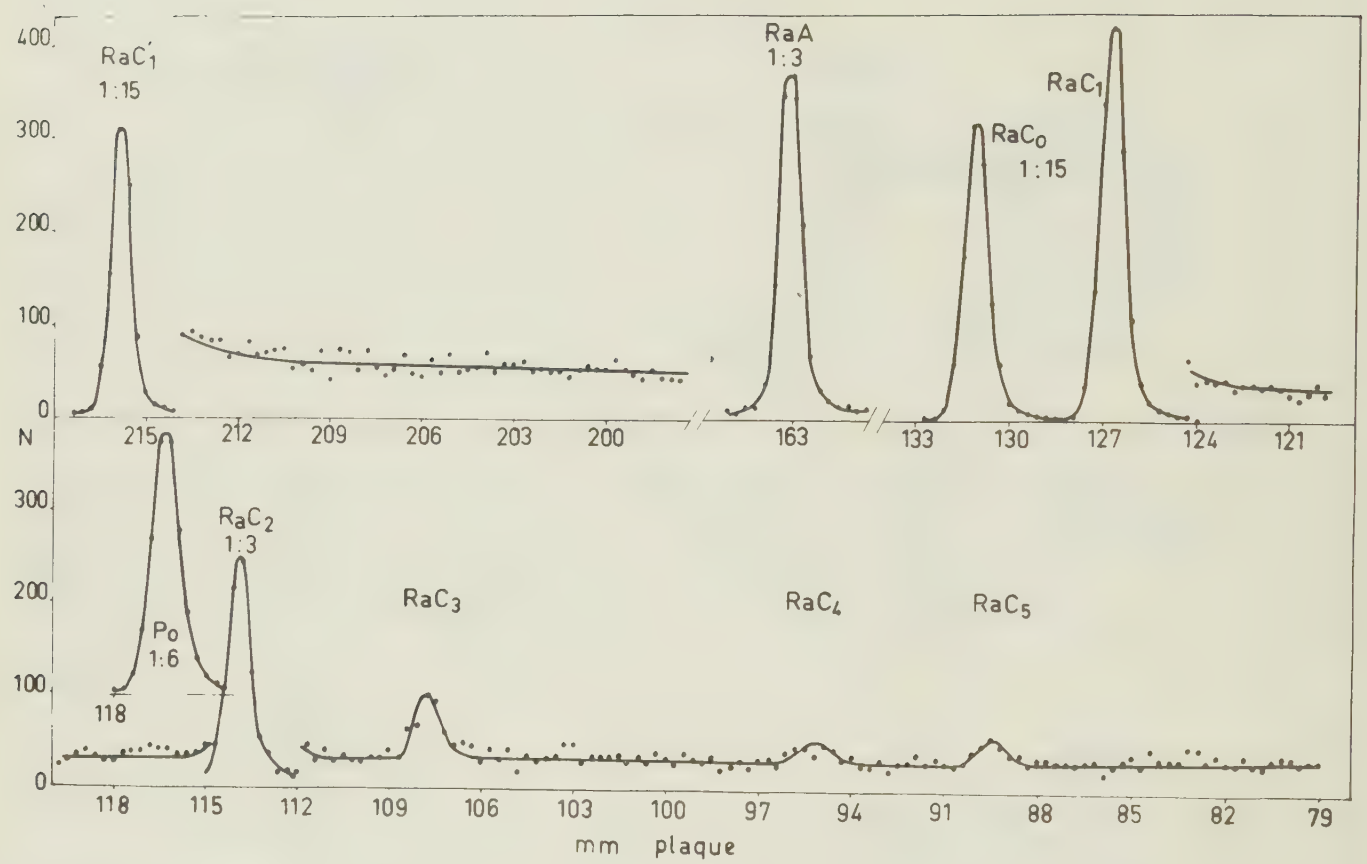
Fig 24 Appareil à activation pour ^{214}Bi

IV. 3 Poses et résultats.

Les spectres obtenus sont rassemblés dans la figure 25, page 80.

IV.3.1 Détermination des énergies.

Nous avons recueilli les résultats de deux expériences successives, l'une à partir d'une activation sur Pt, l'autre à partir d'une activation sur Ta. (47). Dans les deux cas une première pose dès préparation, (40 mm environ après arrêt de l'activation), a été suivie d'une pose plus longue, quelques jours après, pour avoir sur la plaque ^{210}Po qui devait constituer un repère des énergies.



- Figure 25 - Spectre de ^{214} Bi -

De même ^{218} Po (Ra A) présent dans le dépôt actif pouvait constituer un repère du côté des fortes énergies. On a pu remarquer également à l'occasion de ces deux poses que Ra A n'a pu être décélé que sur la pose faite à partir du platine, le préchauffage (à 400° environ) ayant suffi, à partir de la feuille de tantale, à éliminer ^{218} Po ce qui est en accord avec la remarque faite auparavant au sujet de Ra E. Ces deux corps ^{218} Po et ^{210} Po encadrant le spectre trouvé ont permis une détermination précise des énergies.

IV.3.2 Détermination des intensités.

La détermination absolue des intensités ne pouvait se déduire directement des mesures d'activité α et β faites en cours de préparation de la source. A partir d'un mélange Ra B + Ra C d'un certain taux sur le creuset, la volatilisation donne sur la feuille une source de dépôt actif de composition différente. En effet les coefficients d'attachement sur le verre de Pb et Bi ne sont pas les mêmes. Ra C enregistré a été en partie distillé, en partie formé dans Ra B codistillé. Le rapport $\frac{\text{Ra B}}{\text{Ra C}}$ ne pouvait se déduire que de mesures α et β de la source relativement prolongées, car les constantes de désintégration de ces deux corps sont voisines. Le temps de ces mesures aurait entraîné une décroissance de la source nuisible à l'intensité de la pose. La source était en début de pose, très intense et évaluée à 20 mc.

C'est en suivant la décroissance d'une source témoin, moins intense, préparée dans des conditions tout à fait identiques à celles de la précédente, qu'on a pu interpréter les mesures faites au compteur α avant et après la pose de la source principale.

En effet si λ_1 correspond à Ra B

et λ_2 à Ra C

N_2 nombre d'atomes de Ra C présents au temps t est donné par :

$$N_2 = N_{2_o}\, e^{-\lambda_2 t} + N_{1_o}\, \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}\right)$$

Si on prend comme origine des temps le moment où $N_{2_o} = 0$ on aura :

$$N_2 = N_{1_o} \frac{\lambda_1}{\Delta\lambda} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}\right) \text{ avec } \Delta\lambda = \lambda_1 - \lambda_2$$

$$\text{Et } r(t) = \frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\Delta\lambda} \left(1 - e^{-\Delta\lambda t}\right)$$

Deux mesures en α (Ra C seul) mais séparées par un temps notable, permettent à l'aide de la courbe r (t) de déterminer le temps fictif où $N_2 = 0$ donc correspondant au début de la désintégration de Ra C total.

La comparaison des mesures de la source témoin faites avant et après distillation a précisé que : r (t) est ramené après volatilisation de $r = 0,88$ à $r = 0,64$, ce qui montre que la condensation sur la feuille est favorable à Pb (Ra B). On peut considérer que pour 4 Pb il y a 3 Bi fixés sur la feuille.

En supposant que la reproductibilité des conditions expérimentales entraîne pour les deux sources un comportement identique, les résultats obtenus avec la source témoin ont été appliqués à la source principale.

La comparaison entre les mesures au compteur α et les intensités enregistrées sur les plaques, définissant l'angle solide d'utilisation du spectrographe dans les conditions de l'expérience, a été faite au moyen d'une source auxiliaire et cette détermination a permis de déduire des mesures précédentes une première valeur pour l'intensité α totale de la pose principale : $2,05 . 10^{-4}$.

On pouvait faire une autre évaluation du rapport d'embranchement α de Ra C à partir de Po formé dans la source et enregistré sur une pose longue intervenant après désintégration totale du dépôt actif.

- Intensité évaluée à partir du polonium formé -

Une pose faite plusieurs jours après les deux poses principales a donné une raie de Po que l'on a comptée pour avoir un repère d'énergie. Le Po enregistré provient de Ra D présent dans la source. Le Ra D s'est formé dans le dépôt actif entre le début de l'activation et la distillation, puis dans le Ra B et le Ra C distillés, entre la distillation et la fin de pose sur laquelle on compte la raie. Ce calcul est très compliqué et de plus les sources d'erreurs sont nombreuses : en effet du Ra D peut s'être détaché par recul de Ra C', enfin on n'est pas sûr que la volatilisation de Ra B et Ra D se fassent dans des conditions identiques la forme chimique du Ra D recueilli directement n'étant pas forcément la même que celle du Ra D formé. Toutes ces causes d'erreurs s'ajoutent à un calcul d'évolution d'activité de 8 corps en filiation pour lequel on est obligé de faire des approximations.

L'intensité absolue de Po a été déduite d'un comptage soigné des α enregistrés sur la plaque. Le comptage correspondait à Po formé à partir de Ra D total présent dans la source donc provenant de Ra C détruit depuis le début de l'activation.

L'interprétation du rapport : $\frac{\text{Intensité enregistrée pour Ra C}}{\text{Intensité enregistrée pour Po}}$, pour arriver à l'intensité relative d'embranchement α de Ra C a été faite à partir de certaines hypothèses résumées ici rapidement.

On a admis que Ra B et Ra D se comportent de façon identique dans la distillation c'est-à-dire que le rapport $\frac{\text{Ra D}}{\text{Ra E}}$ évolue comme le rapport $\frac{\text{Ra B}}{\text{Ra C}}$ mesuré au moyen de r (t) avant et après distillation.

Cette hypothèse permet de calculer le rapport Ra D formé durant la pose / Ra D total présent dans la source et Ra E formé / Ra E présent.

De l'intensité de la raie de Po observée, on peut ainsi déduire la quantité de Ra C détruit au cours de la pose principale, donc la valeur d'embranchement α.

Cette évaluation a donné une valeur identique à la précédente soit: $2,05 . 10^{-4}$.

- Evaluation à partir de Ra C' α_1. -

Ra C' (^{218} Po) α_1, décelé sur la pose de la famille du Ra était présent sur notre plaque.

On a également déduit l'intensité globale des deux raies Ra C α_o et Ra C α_1 trouvées, de l'intensité évaluée en I.6 pour la raie Ra C' α_1 . Le résultat est en bon accord avec les évaluations précédentes :

$2,2 . 10^{-4}$

La valeur adoptée à la suite de ces évaluations est donc :

$$2,1 \pm 0,13 . 10^{-4}$$

IV.3.3 Résultats.

Raies	Energie en KeV	$\triangle$ E α	$\triangle$ E t	I relative	I absolue
^{214} Bi α_o	5.512	0	0	39,2 $\pm$ 0,3	0,82. 10^{-4}
α_1	5.448	63,8	65	53,9 $\pm$ 0,3	1,16. 10^{-4}
α_2	5.268	244 $\pm$ 0,5	249	5,8 $\pm$ 0,1	1,25. 10^{-5}
α_3	5.184	328 $\pm$ 1	336	0,61 $\pm$ 0,06	1,3. 10^{-6}
α_4	5.023	489 $\pm$ 2	498	0,21 $\pm$ 0,04	4,7. 10^{-7}
α_5	4.941	571 $\pm$ 2	581	0,25 $\pm$ 0,05	5,2. 10^{-7}

IV.3 - Tableau 1 -

V DISCUSSION DE CERTAINS RESULTATS.

V.1 Tableau récapitulatif.

- Le tableau suivant résume les résultats des expériences décrites dans le présent travail ainsi que dans les publications sous ref. (W4) (B5) (W7) (W9). La dernière colonne donne succinctement les résultats de différents auteurs, en se limitant aux études les plus récentes ou les plus significatives.

- Les valeurs d'énergies entre parenthèses dans le tableau correspondent à des déterminations antérieures, et ont été prises comme base pour les énergies des autres niveaux. La colonne "spectro α", sous la rubrique "Autres auteurs", contient également des valeurs d'énergies entre parenthèses. Les raies principales des éléments correspondants avaient été détectées dans les spectres α, sans que les structures fines aient pu être mises en évidence par ces mêmes auteurs.

- Les intensités sont des intensités absolues résultant éventuellement des déterminations d'embranchement α. La somme des intensités est 1, lorsque l'émission est α pure.

Nucl. émetteur	Présent travail		Autres auteurs	
	E α en KeV	Intensités	Spectro. α	Méthodes indirectes
^{226}Ra α_0	(4.782)	0;946	4.782 B4	
α_1	4.599	0,054	4.599 R7	spec. γ et
α_2	4.340	$5{,}1.\ 10^{-5}$	A2	coïnc. α γ H4 S3
α_3	4.190	$\sim 7.\ 10^{-6}$		
^{222}Rn α_0	(5.490)	# 1	(5.490)	
α_1	4.987	$7{,}8.\ 10^{-4}$		coïnc. α γ M2
α_2	4.827	$\sim 5.\ 10^{-6}$		
^{218}At α_0	6.697	0,94		(6.700) ch. ion. W6
α_1	6.653	0,06		
^{218}Po α_0	(6.002)	1	(6.002)	
α_1	5.181	$1{,}1.\ 10^{-5}$		
^{214}Po α_0	(7.687)	1	(7.687)	
α_1	6.906	10^{-4}		
^{210}Po α_0	(5.305)	1	(5.305)	
α_1	4.518_3	$1{,}07.\ 10^{-5}$		coïnc. α γ D3 spec. γ H5
^{214}Bi α_0	5.512	$0{,}82.\ 10^{-4}$	5.510	
α_1	5.448	$1{,}16.\ 10^{-4}$	5.449 R13	
α_2	5.268	$1{,}25.\ 10^{-5}$		
α_3	5.184	$1{,}3.\ 10^{-6}$		
α_4	5.023	$4{,}7.\ 10^{-7}$		
α_5	4.941	$5{,}2.\ 10^{-7}$		
^{210}Bi α_1	4.685	$0{,}5.\ 10^{-6}$		exist. prouv. chim. B6 F2
α_2	4.649	$0{,}76.\ 10^{-6}$		

V.1 - Tableau Récapitulatif -

V.2 Facteurs d'empêchement.

Le "facteur d'empêchement" (Hindrance Factor ou Facteur F) représente en principe le rapport des intensités α calculée et observée pour un émetteur pair-pair. Le calcul se fait en général en application de la théorie de Gamow (G1), par la formule de Preston (P2), et la notion en est étendue aux noyaux impairs par interpolation linéaire. Ce facteur est quelquefois appelé "facteur d'interdiction", par analogie avec les facteurs caractérisant les transitions β et γ. Toutefois le maintien du terme "empêchement", (traduction littérale de "hindrance"), semble justifié : en effet les empêchements déduits des intensités observées ne se groupent pas autour de valeurs discrètes et élevées, mais couvrent une gamme continue, et ne ressemblent pas en cela aux facteurs d'interdiction des spectres β par exemple. De plus, le facteur F comprend, ainsi qu'on le verra plus loin, un facteur de préformation de la particule α, qui, à priori, ne fait pas intervenir des degrés d'interdiction mais simplement une difficulté plus ou moins grande. Le terme d'interdiction sera, par convention, réservé au cas des transitions totalement défendues, "transitions interdites".

De nombreux auteurs parmi lesquels, Perlman et Rasmussen (P3), Gallagher Jr et Rasmussen (G2), puis Michel (M4), et, indépendemment Fröman (F3), ont donné des tableaux de facteurs F pour les différents émetteurs α connus. Ils ont constaté des régularités dans ces facteurs pour des structures fines de corps dans le même domaine de A, régularités liées au spin du niveau atteint ou à la qualité (rotation, niveau de particule ou de vibration) de ce niveau. Inversement le calcul d'un facteur F peut conduire à des hypothèses dans ces mêmes domaines.

Pour les noyaux pairs-pairs, les observations expérimentales conduisent toujours à une émission α préférentielle vers l'état fondamental du corps descendant. Ceci a amené Perlman et Rasmussen (P3) et Michel (M4) à l'hypothèse semi-empirique que pour les pairs-pairs F = 1 pour le groupe fondamental. Ils en déduisent, par l'intermédiaire de la formule de Preston, des évaluations de rayons nucléaires pour les différents noyaux.

Ceci peut comporter pour certains noyaux des résultats discutables. Ainsi pour les Rn, les variations de F dûes à l'observation expérimentale de périodes élevées, entraînent pour les rayons nucléaires une brusque discontinuité entre ^{216}Rn et ^{212}Rn. La même discontinuité est traditionnellement invoquée pour les Po (P4) (P5) (K2), liée cette fois à la proximité des couches fermées, le noyau descendant étant magique en protons, discontinuité intervenant au moment où la formation de la particule nécessite le prélévement de deux neutrons intérieurs aux couches fermées (cas de ^{210}Po).

D'autres auteurs ont essayé d'expliquer de différentes façons, la grande marge qui sépare des calculs théoriques les périodes alpha observées, pour les états fondamentaux ou les différents niveaux de structure fine. Tolhoeck et Brussard (T2) développant une suggestion de Winslow (W8), invoquent la "préformation" de la particule α, préalable à l'émission, préformation basée sur le recouvrement des fonctions d'onde des nucléons entrant dans la particule. Les calculs donnent une probabilité de préformation très faible, (de l'ordre de 10^{-4}), qui pourrait être invoquée comme retard dans certaines désintégrations. Dans cet esprit, on peut, semble-t-il, envisager un facteur F lié à la préformation (appelé Fp), facteur F qui joue un rôle d'autant plus grand que le nombre de nucléons disponibles pour former un alpha à l'extérieur des couches fermées, est plus petit. Ce facteur jouerait un rôle réduit lorsque le nombre de paires de nucléons extérieur aux couches fermées serait suffisant (<4 par exemple), et on supposerait alors avec Perlman que $F \sim 1$ pour le niveau fondamental à priori. Ceci reviendrait à supposer que $F \sim 1$ lorsque Fp lui-même ~ 1.

Notons que cette notion de formation de particule α a été invoquée par Rasmussen (R14), comme explication possible de l'émission anisotrope vis à vis de l'axe nucléaire principal pour les noyaux très déformés. Fp défini plus haut correspondrait dans ce cas là à une moyenne prise sur toutes les directions d'un certain F'p variable avec l'endroit considéré de la surface nucléaire.

De même, ce problème est longuement discuté par Perlman et Rasmussen (P3) au sujet des noyaux impairs, pour lesquels l'émission α de plus grande intensité n'est pas forcément celle qui aboutit au niveau fondamental, mais correspond à une formation de particule qui laisse les deux noyaux émetteur et descendant dans le même état en ce qui concerne le nucléon impair (c'est-à-dire particule α à partir de deux paires ne comprenant pas ce nucléon).

L'introduction du facteur Fp permettra, dans les cas ici étudiés, la discussion de certains résultats. L'hypothèse d'une variation lente du rayon nucléaire avec le nombre de nucléons permet de reporter en partie sur le facteur Fp, les variations de probabilité d'émission, jusque là attribuées exclusivement à de fortes et brusques discontinuités dans ces rayons. Le facteur Fp serait plus important selon que la formation de la particule fait appel à des nucléons par paires ou non, intérieurs ou non aux couches fermées. Ce facteur de même n'aura pas forcément la même valeur pour les niveaux d'excitation différente d'un même nuclide, en particulier lorsqu'on disposera de peu de nucléons à l'extérieur des couches fermées pour la formation de l'α.

V.2.1 Radium.

Les évaluationsde F faites à partir de nos intensités sur la base des calculs de Michel donnent pour ^{226}Ra :

Raies	Ra α_0	Ra α_1	Ra α_2	Ra α_3
Facteurs F	1	0,97	13	~ 5

V.2 - Tableau 1 -

On remarque que pour le niveau Ra α_1, si l'on apporte à F la correction de barrière centrifuge Fc, celle-ci étant pour un rayonnement 2 + de l'ordre de 1,6, on a un facteur F de l'ordre de 0,6. Ceci peut s'expliquer, en accord avec le paragraphe précédent, si

on suppose pour le noyau excité un facteur de préformation de l'α favorisant le premier niveau.

Les facteurs F pour Ra_2 et Ra_3 sont conformes aux noyaux pairs environnants et peuvent pour des niveaux de même nature correspondre à un Fp identique.

V.2.2 Polonium.

Les évaluations de Stephens et al (S5) des r_o étaient pour les différents Po les suivantes :

Po	218	216	214	212	210	208	206
r_o	1,543	1,541	1,545	1,527	1,422	1,422	1,460

V.2 - Tableau 2 -

Pour les Po de $A < 206$, un facteur $F = 1$ amènerait à augmenter le rayon nucléaire au fur et à mesure que l'on s'écarte de ^{210}Po, ce qui ne paraît pas logique lorsque le nombre de nucléons diminue.

Au contraire, supposer une densité nucléaire constante reviendrait à prendre r_o variant peu pour un même Z. En prenant pour r_o la valeur la plus grande 1,545, les corrections à apporter aux facteurs F, pour tenir compte des périodes observées seraient conformes au tableau suivant dans lequel on a joint les facteurs F pour les premiers niveaux des ^{218}, ^{214}, ^{210}Po.

Po	218	216	214	212	210	208	206	204	196
F fondamental	~ 1	~ 1	~ 1	1,7	60	38	15	~ 6	~ 1
F premier niveau 2^+	5		17		24				

V.2 - Tableau 3 -

Fixer la valeur de r_o donnerait donc pour F en fonction du nombre de paires de neutrons prélevé dans le corps émetteur une variation qui est donnée figure 26 (sous les réserves faites en V.2 ·

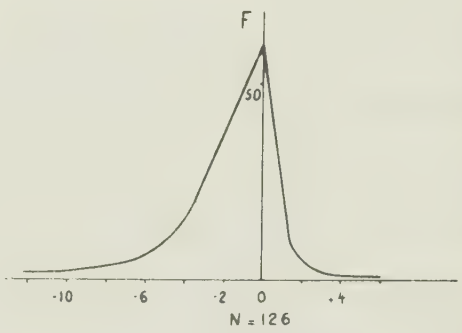


Fig. 26 Facteurs F en fonction de N

Le facteur F est égal à 1 aux deux extrêmités et la discontinuité dans la courbe se produit lorsqu'intervient le prélévement de la première paire de neutrons dans la couche fermée. L'hypothèse r_o constant ne peut se concevoir que lorsque c'est la barrière de potentiel du corps émetteur qui est prépondérante dans le mécanisme d'émission α. En effet, si c'était le noyau final, ici Pb, au passage de ^{210}Pb à ^{208}Pb, on devrait effectivement observer une discontinuité dans r_o, dûe à l'épuisement des nucléons extérieurs aux couches

fermées. En réalité, bien entendu, on ne peut pas partager les phénomènes en deux temps, en séparant les deux états, noyau initial, puis noyau final et particule α, qui ne se décomposent pas dans le temps. Ceci rejoint la discussion de Perlman et al (P4) qui, partant eux de l'hypothèse de rupture de r_o pour ^{210}Po et en général au voisinage des nombres magiques arrivent toutefois à la même conclusion d'indiscernabilité de fait dans le temps des noyaux émetteur et final.

^{210}Po exige pour la formation de l'alpha le prélèvement de deux nucléons à l'intérieur des couches fermées. Or, la dernière couche avant le niveau magique ne comporte que des nucléons p1/2 et le choix est donc limité. D'où le facteur F très élevé pour le niveau fondamental. (Pour ^{212}Po, le choix n'existe plus car on prélève tous les nucléons extérieurs aux couches fermées d'où un facteur F beaucoup moins élevé pour le niveau fondamental).

Le premier niveau 2 + est favorisé par rapport au fondamental. Mais si l'on considère les nucléons des trois dernières couches qui peuvent en s'associant donner une paire de spin 2 +, on constate que le nombre de possibilités est grand. Deux nucléons p1/2, six f5/2, et quatre p3/2 composent les dernières couches, et ce niveau 2 + serait d'après Kearsley (K3) et True et al (T3) un mélange de configurations, (p1/2 f5/2), (p3/2 f5/2) (p1/2 f5/2), $(f5/2)^2$, $(p3/2)^2$, ce qui expliquerait un facteur F moins élevé que pour le niveau fondamental, en dépit éventuellement de la formation de paire à partir de deux nucléons de couches différentes.

Pour ^{214}Po, le facteur F d'empêchement correspondant au premier niveau est au contraire très grand. Or ^{214}Po ne comprend que 4 neutrons extérieurs aux couches fermées et tous probablement g9/2. Pour que l'émission α aboutisse à un noyau excité de spin 2 +, il faut que dans le noyau de départ, l'on parte d'une configuration qui inclue celle du noyau final. Pour aboutir au niveau fondamental il suffit de prendre la configuration dominante $\left[(g9/2)^2 0+ (g9/2)^2 0+\right]$ et de prélever une de ces deux paires. Au contraire pour obtenir 2 +, il faut, dans le mélange de configurations du noyau initial utiliser par exemple

la composante, certainement plus faible $[(g9/2)^2, 2+$ et $(g9/2)^2, 2+]$ $0+$, ce qui expliquerait un facteur F élevé non par "préformation" difficile dans l'espace, mais dans le temps.

^{218}Po qui comprend un nombre de nucléons extérieurs aux couches fermées plus grand, a pour le premier niveau excité un facteur F assez petit ce qui est conforme au raisonnement précédent, la formation de la particule faisant intervenir la même composante que pour ^{214}Po, composante plus élevée à cause du plus grand nombre des nucléons dans la couche.

V.2.3 Bismuth.

Avec les ^{210}Bi et ^{214}Bi, la formation de la particule α concerne toujours un proton extérieur et un proton intérieur à la couche fermée. Avec ^{210}Bi il en est de même pour les neutrons. La discussion des facteurs d'empêchement est dominée, comme dans tous les cas des corps de Z impair proche de 82, par différentes possibilités d'assemblage de nucléons ; ainsi Fp prendra qualitativement des valeurs croissantes suivant que la formation de l'α fera intervenir deux paires de nucléons, une paire + deux nucléons ou quatre nucléons séparés ; de même les valeurs de Fp seront différentes selon que les nucléons s'assemblant en paires proviendront de deux couches intérieures, extérieures, ou l'une intérieure et l'autre extérieure aux couches correspondant aux nombres magiques.

Ceci part de l'hypothèse que pour la région proche de ^{208}Pb, le modèle des particules (M5) est une bonne approximation et amène à proposer pour les bismuth des configurations de particules, configurations d'état initial et final.

Dans ce cas particulier, le prélèvement nécessaire d'un proton au moins à l'intérieur de la couche fermée comporte à priori un facteur défavorable à la préformation. En d'autres mots on ne peut disposer d'une transition α supposée favorisée servant de repère pour la courbe des facteurs F en fonction de A. Mais comme d'autre part, on n'a pas pour les Tl de renseignements précis sur les spectres γ et de conversion (à part quelques niveaux pour ^{212}Bi et ^{210}Bi) la spectrographie α seule peut donner les niveaux.

L'évaluation des facteurs F, se fera donc à partir d'une formule théorique dans

laquelle le choix du rayon nucléaire sera assez arbitraire, mais fixé en supposant, comme dans le cas des Po, qu'il n'y a pas de grande discontinuité de r au passage pour N par le nombre magique 126.

Néanmoins ce choix a été fait sans prendre en considération les discussions théoriques au sujet du rayon intervenant dans l'évaluation de la barrière de potentiel pour l'émission α : qui dans le cas des Bi est particulièrement important.

Le r choisi l'a été par continuité à partir des r des At, Po avoisinants et en considérant le noyau de départ.

V.3 Propositions de spins et de schémas.

V.3.1 Proposition de spins pour ^{210} Bi.

La réaction de capture ^{209} Bi (n, γ) donne naissance, à côté de Ra E, à l'isomère à vie longue ^{210} Bi* (L1) état excité de ^{210} Bi pour lequel une limite supérieure de période serait T = $(8 \pm 2)\ 10^{13}$ sec (H7). L'étude de Golenetskii et al (G3) par chambre d'ionisation α et par spectrométrie γ à scintillation, a précisé les rayonnements attribuables au Bi à vie longue pour lequel ces auteurs proposent le spin 9 -.

Les discussions sur le choix du spin pour Ra E ont été nombreuses et on admettait sur la base des configurations nucléaires, que Ra E devait avoir le spin 0. Des considérations plus récentes (K4) (L2) lui attribuent le spin 1 - et nos résultats confirment ce choix sans ambiguité.

En effet, les deux isomères donnent naissance à ^{206} Tl émetteur β pur dont le spin est 0-. Le spectre β de ^{206} Tl, qui a été longuement étudié, est simple et ne comporte pas de rayonnement γ (A4). Ceci autorise à proposer pour ^{206} Tl un spin 0-. Un spin 1- donnerait pour l'émission β vers Pb 0+ et Pb 2+ deux composantes avec émission de 2 à 4 % (non observée). Un spin 2- donnerait une émission principale vers le niveau 2+ de Pb et on aurait vu le fort rayonnement γ de 803 KeV.

On a dans ces conditions une transition α interdite de ^{210} Bi, 9 - vers ^{206} Tl, 0 -. De même le cycle des énergies Ra E $\rightarrow$Pb $\rightarrow$Tl $\rightarrow$Ra E donne, pour E α Ra E, une énergie disponible supérieure de 257 KeV à celle de nos mesures. La transition vers l'état fondamental de ^{206} Tl est donc interdite également à partir de Ra E dont le spin serait 1 - ou 3 -.

De nombreuses études du spectre β de Ra E, et γ de Ra D (M6) (F4) ont amené le choix sur 1 - ce qui est en parfait accord avec nos résultats, un état fondamental 3 - donnant une interdiction du 3e ordre vers ^{210} Po ce qui n'est pas le cas.

Le niveau de 47 KeV dans ^{210} Bi, que la désintégration β de Ra D atteint dans la proportion de 85 % (S6), est de toute évidence 0 - en accord également avec la transition M1 pure vers le fondamental.

La différence d'énergie séparant les deux états isomèriques ($\sim$ 25 KeV) semblait peu explicable jusqu'aux résultats de Golenetskii et al (G3). Une étude récente de Holm et al (H8) apporte également à ce sujet des précisions intéressantes.

Ces auteurs étudient la réaction de "stripping" (rupture en vol) ^{209}Bi (d.p.) ^{210} Bi au point de vue énergie et distribution angulaire des groupes de protons. Leurs résultats confirment un niveau vers 270 KeV (alors que le niveau de 47 KeV est expérimentalement non résolu du niveau fondamental.) Ils arrivent à la conclusion que tous les niveaux de faible excitation appartiennent à la configuration h9/2 g 9/2 (la configuration h9/2 i11/2 n'apparaissant que pour une excitation de 0,888 MeV) et suggèrent que les 10 niveaux de la configuration h9/2 g9/2 sont contenus dans la bande de 0 à 0,6 MeV. Les auteurs proposent pour la succession des dix niveaux les spins 1 -, 0 -, 9 -, 2 -, 3 -, 7 -, 5 -, 4 -, 6 -, 8 -.

Ceci peut expliquer l'obtention par ^{209} Bi (n. γ) ^{210} Bi de l'état isomérique 9 -. Les multiplets successifs ont tous pour le niveau le plus excité un spin élevé (ici 8 -) Une petite fraction de capture peut donc, par cascade de niveau supérieur à niveau supé-

rieur de multiplet, aboutir au niveau 8 -. De là, une cascade peut partir par 8 -, 5 -, 3 -, 2 - par exemple vers Ra E 1 -, l'autre transition atteignant directement 9 - et se fixant sur l'état isomèrique.

Ceci suppose implicitement que l'état le plus stable du multiplet h9/2 g9/2 est 1 -, contrairement aux prévisions de Pryce (P6) et de Newby et Konopinsky (N3), dont en général les évaluations théoriques montrent pour les configurations avec p et n des écarts notables avec les déterminations expérimentales, alors que leurs déterminations pour les configurations avec p, p ou n, n sont en bon accord avec l'expérience.

V.3.2 Schéma

A partir de ces hypothèses la comparaison avec les résultats de Golenetskii et al (G3) peut permettre l'établissement d'un schéma pour ^{206} Tl.

Les résultats de spectrométrie γ et de spectrographie α sont les suivants :

Rayonnements γ (G3)

	γ_1	γ_2	γ_3	γ_4
Energie	260 ± 10	300 ± 10	340 ± 10	620 ± 20
Intensité relative	0,6	0,3		

V.3 - Tableau 1 -

Le tableau suivant, page 97, rassemble les résultats de Golenetskii et les nôtres pour ^{210} Bi* et ^{210} Bi (qui sera dans le tableau indiqué sous la rubrique Ra E).

Rayonnements α (G3) (W9)

^{210}Bi*	E α KeV	T α sec.	γ coïncidence	Ra E	E α KeV	T α sec
α_1	5.130	$\sim 8. 10^{16}$				
α_2	4.930	$1,35. 10^{14}$	γ_1	α_1	4.689	$9. 10^{11}$
α_3	4.890	$2,35. 10^{14}$	(γ_1), γ_2	α_2	4.649	$6. 10^{11}$
α_4	4.590	$1,6. 10^{15}$	γ_1, γ_2 (?) γ_3, γ_4			
α_5	4.480	$\sim 1,6. 10^{16}$				

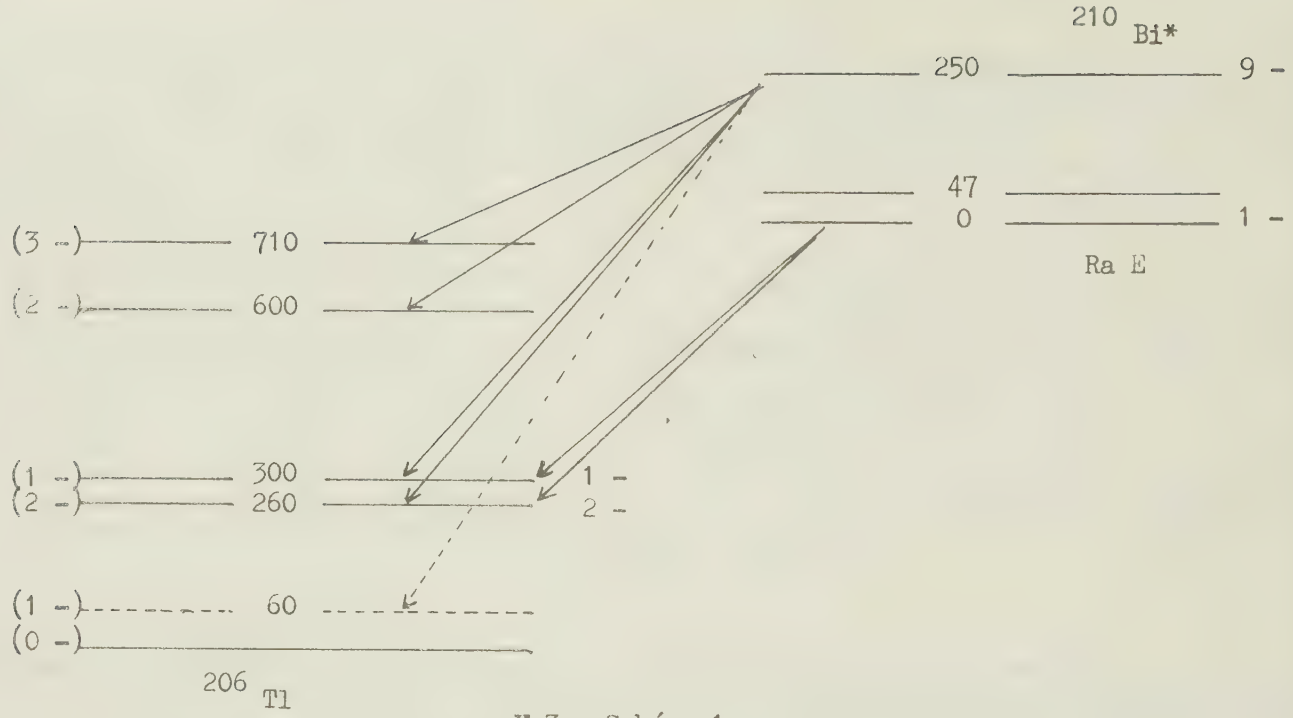
V.3 - Tableau 2 -

L'écartement des niveaux correspondant aux groupes α les plus intenses est de 40 KeV dans les deux spectres ce qui suggère de faire aboutir ces rayonnements sur les mêmes niveaux de ^{206}Tl. Ce seraient les niveaux correspondant aux rayonnements γ intenses de 260 et 300 KeV (γ_1 et γ_2 des auteurs cités).

Les spins adoptés précédemment, 9 - pour ^{210}Bi* et 1 - pour Ra E conduisent à proposer pour ces niveaux de ^{206}Tl les spins 2 - pour le niveau défini par γ_1, 1 - pour celui défini par γ_2. A partir de ^{210}Bi*, ℓ min = 8 pour les deux transitions α (n^{os} 2 et 3 de Golenetskii), tandis que à partir de Ra E, ℓ min = 2 pour la transition vers le niveau le plus bas et ℓ min = 0 pour l'autre. On trouve ainsi que, dans les deux cas les facteurs F corrigés du facteur centrifuge, sont identiques pour les deux groupes d'un même isomère.

Notons que nos conditions expérimentales ne permettaient pas, dans le domaine d'énergie du premier niveau proposé par Golenetskii, de "voir" une raie d'intensité inférieure à 1 % de notre première raie. Toutefois ce niveau est, dans le schéma de la page 98, représenté en pointillés car la valeur du facteur F qui y correspondait, (10^{10}), nous a semblé anormalement élevée.

Le schéma en accord avec ces résultats serait le suivant :



V.3 - Schéma 1 -

N.B Les spins entre parenthèses sont les spins proposés par Golenetskii.

Le niveau fondamental et le niveau 1 - pourraient être les termes du doublet s1/2 p1/2, avec un intervalle d'énergie de 300 KeV (par comparaison, dans ^{202} Tl et ^{204} Tl la séparation du doublet fondamental (s1/2 f5/2), 2 - 3 -, est $>$490 KeV pour 202 et $>$410 KeV pour 204).

Le niveau 2 - serait le premier terme du doublet s1/2 f5/2 dont le deuxième terme n'a pas été détecté par transition α dans Ra E.

V.3.3 Schéma de ^{214} Bi.

L'interprétation de la structure fine trouvée se fera en essayant de classer les niveaux sur la base de configurations intéressant un nombre limité de nucléons.

On a adopté la succession des niveaux couramment admise à partir des études de noyaux ne différant de ^{208} Pb que par un seul nucléon soit :

protons 2 d5/2 2 d3/2 3 s1/2 1 h9/2 2 f7/2

neutrons 3 p3/2 2 f5/2 3 p1/2 2 g9/2 1 i11/2

L'étude du spectre de ^{214} Bi sera faite par comparaison avec celle de ^{212} Bi. La succession des raies pour ces deux corps et les facteurs F déduits des résultats sont réunis dans les tableaux suivants : les facteurs F ici étant toujours élevés ce sont les log F qui seront reportés.

(N.B) ^{212} Bi	0	1	2	3	4	5	6	7
E α (R4) (W10)	(6.090)	(6.051)	(5.768)	(5.626)	5.607	5.481	5.345	5.271
I en %	27,1	69,7	1,78	0,165	1,19	$1,4.10^{-2}$	10^{-3}	$\sim 1,1.10^{-4}$
Log F	3,25	2,7	2,9	3,2	2,3	3,5	3,9	$\sim 4,7 \pm 0,1$

V.3 - Tableau 3 -

^{214} Bi	0	1	2	3	4	5
E α en KeV	5.512	5.448	5.268	5.184	5.023	4.941
I relative	39,2	53,9	5,8	0,61	0,21	0,25
Log F	2,95	2,5	2,5	3	2,5	2,0

V.3 - Tableau 4 -

N.B Les raies sont ici données dans l'ordre simple découlant de leur énergie décroissante sans tenir compte des inversions d'intensités qui font souvent appeler α_0 la deuxième raie et α_3 la cinquième.

Le spin de l'état fondamental de ^{212} Bi et ^{214} Bi est 1 - ainsi qu'il résulte en particulier des études de distribution angulaire $\alpha\ \gamma$ de Horton (H9) pour ^{212} Bi, et de la justification proposée en I.4 page 64, pour ^{214} Bi.

Krisyouk et al (K5), dans leur étude des rayonnements β et γ de ^{212} Pb $\longrightarrow$ ^{212} Bi proposent pour les quatre premiers niveaux de ^{212} Bi la succession des spins 1 -, 0 -, 1 -, 0 -, faisant correspondre chacun au premier terme des multiplets : $h9/2\ (i11/2)^3$, $h9/2\ (i11/2)^2\ g9/2$, $h9/2\ (g9/2)^2\ i11/2$ et $h9/2\ (g9/2)^3$. Or, d'après les mesures de correlation angulaire de Horton, le doublet de base de ^{208} Tl correspond à la configuration $s1/2^{-1}\ g9/2$. Une émission α, à partir de la configuration proposée par Krisyouk et al, serait très fortement interdite vers ^{208} Tl. On peut, au contraire, considérer les quatre premiers niveaux de ^{212} Bi comme les deux premiers termes des deux multiplets : $h9/2\ (i11/2)^2\ g9/2$ et $h9/2\ (g9/2)^3$. Ceci suppose que, pour le multiplet $h9/2\ g9/2$, la règle $j_1 - j_2$ pour le niveau le plus bas n'est pas absolue. Remarquons d'ailleurs, conformément aux résultats obtenus pour ^{210} Bi, qu'il semble bien que l'écartement des premiers termes des multiplets soit tel que, dans l'intervalle étudié par Krisyouk, devrait apparaître plus d'un seul niveau de chacun des multiplets invoqués. Enfin ceci permet une interprétation plus facile des transitions γ observées par ces auteurs : la transition directe observée à partir du troisième niveau excité ne devrait pas avoir une intensité mesurable, avec des configurations de départ et d'arrivée où trois neutrons changent de niveau ce qui donnerait un freinage considérable. Avec notre hypothèse, cet effet est atténué, d'autant plus qu'un faible degré de mélange toujours existant peut assurer une probabilité de transition suffisante.

L'émission α se fait donc dans notre hypothèse à partir de ^{212} Bi, 1 - , $h9/2\ (i11/2)^2\ g9/2$, et le doublet de base de ^{208} Tl est $s1/2^{-1}\ g9/2$. ^{210} Tl a une paire de neutrons de plus, et on peut admettre comme vraisemblable une configuration $s1/2^{-1}\ (g9/2)^3$, et pour l'état fondamental de ^{214} Bi, 1 -, $h9/2\ (i11/2)^2\ (g9/2)^3$. A partir de là, la tentative de schéma pour ^{214} Bi est faite en parallèle avec ^{212} Bi et sur la base des intensi-

tés des raies α observées (facteurs Fp).

Après le doublet de base de ^{208}Tl, les prévisions théoriques de Pryce (P6), indiquent un quadruplet ($d3/2^{-1}$ g9/2) et la succession de spins 3, 6, 4, 5. Ceci ne semble pas en accord avec l'expérience : en effet l'examen, d'une part des coefficients de conversion déterminés par O.B. Nielsen (N4), d'autre part des facteurs F, conduirait à adopter pour les niveaux auxquels aboutissent les rayonnements α, 2, 3, 4, 5 de ^{212}Bi, l'ordre de spins 4, 5, 3, 6 qui correspond à un Fp à peu près constant. Dans le même ordre d'idées, pour les deux niveaux atteints par les groupes 6 et 7, on pourrait proposer deux termes du multiplet ($d3/2^{-1}$ i11/2) avec les spins 6 et 7. Le facteur Fp est ici plus élevé, la formation de la particule faisant intervenir, (en image simplifiée), des nucléons de quatre couches différentes i11/2 (N), g9/2 (N), h9/2 (P) et p1/2 (P).

Pour ^{210}Tl, le nombre de niveaux atteint expérimentalement est plus petit à cause de la faiblesse de l'embranchement α qui limite beaucoup l'intensité de source possible. Pour le doublet de base qui présente, comme pour ^{208}Tl, une inversion d'intensité, avec une différence entre les log F presque la même que dans le cas de ^{212}Bi, les spins proposés seraient 5+ et 4+ correspondant donc à des transitions $1- \rightarrow 5+$ et $1- \rightarrow 4+$ (ℓ min respectivement 5 et 3). Si on considère les autres raies comme appartenant au quadruplet $d3/2^{-1}$ $(g9/2)^3$ (raies 2, 3 et 5, spins 4+, 5+, 3+) et $(d3/2)^{-1}$ $(i11/2)^2$ g9/2(raie N° 4 spin 4+), on arrive pour les 6 raies observées à un Fp identique en accord avec la configuration proposée pour ^{214}Bi.

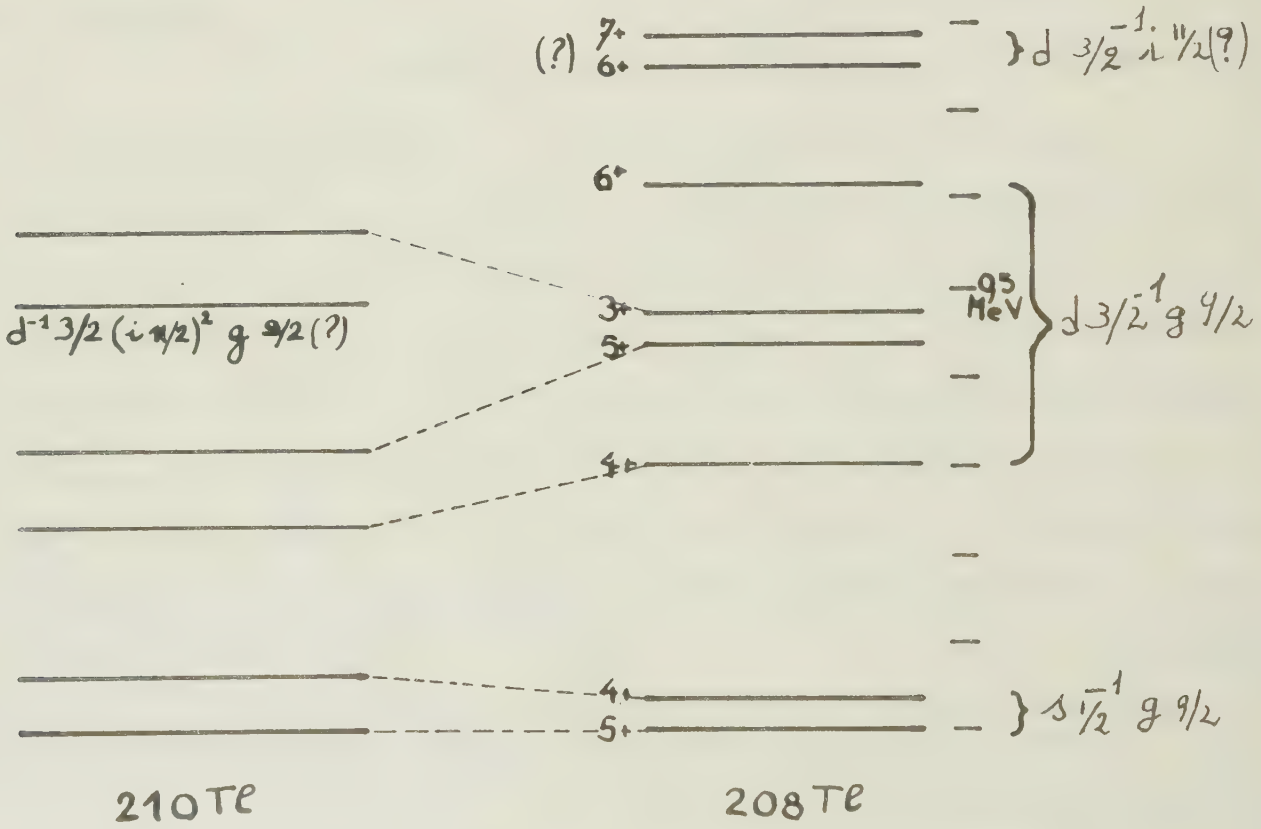
L'ensemble de ces interprétations n'est qu'une tentative d'explication à laquelle il faut apporter les réserves suivantes :

Pour ^{214}Bi, le nombre de nucléons extérieurs aux couches fermées est de 6, et la théorie prévoit déjà un taux de mélange important entre configurations de même spin. Se baser sur une configuration pure n'est donc qu'un raisonnement très approximatif.

De plus, l'hypothèse de base est que l'intervention d'une paire de neutrons i11/2 à la place d'une paire g9/2 peut se faire à l'intérieur d'un intervalle d'énergie

étroit lorsque le proton est, soit $h9/2^{+1}$, soit $d3/2^{-1}$, alors qu'avec un trou $s1/2^{-1}$ (P) aucun fait expérimental ne met en évidence ce resserrement d'intervalle : ainsi dans ^{208}Tl on aurait pu penser trouver un doublet $s1/2^{-1}$ i11/2, (sans inversion d'intensité puisque ℓ min = 5 pour les deux), doublet qui n'existe pas expérimentalement dans les premiers 800 KeV du spectre de niveaux.

Sous ces réserves, l'ensemble des interprétations s'accorderait avec les schémas suivants donnés en parallèle :



V.3 Schéma 2

CONCLUSION.

L'amélioration du spectrographe et des techniques de préparation de sources, en rendant possible la détection de groupes α d'intensités très faibles, a permis d'atteindre des niveaux excités proches de 1 MeV. Ainsi la spectrographie alpha, dont l'avantage réside en ce qu'elle indique sans ambiguité l'emplacement des niveaux a regagné en intérêt vis à vis des méthodes concurrentes : spectrographie γ et de conversion, souvent plus aisées à réaliser ou plus sensibles en ce qui concerne les corps sans filiation, mais laissant des doutes quant aux schémas de niveaux.

J'ai appliqué la méthode aux spectres α de la famille du Ra. Des structures fines ont été déterminées ou précisées pour les émetteurs α pur ou prédominant, ^{226}Ra, ^{222}Rn, ^{218}Po, ^{214}Po, ^{210}Po, ainsi que pour les émetteurs provenant d'un faible embranchement β ^{218}At ($1{,}8.\ 10^{-4}$), ou correspondant à un embranchement α faible : ^{214}Bi ($2.\ 10^{-4}$) et ^{210}Bi ($1{,}25.\ 10^{-6}$). Les résultats sont rassemblés dans un tableau page 86.

Les schémas de niveaux qui en découlent ont été discutés, au point de vue interprétation possible à partir des modèles nucléaires intéressant les régions proches de ^{208}Pb.

Les difficultés rencontrées, et signalées en cours d'exposé, seront partiellement évitées avec les nouvelles installations d'Orsay. Le grand aimant de Bellevue y est actuellement installé dans une salle où la température de l'aimant est maintenue constante à quelques dixièmes de degré C près. Aucun élargissement des raies dû aux variations du champ n'intervient donc même en cas de pose longue. Une raie faible, si elle est plus fine, peut se "voir", par simple examen à l'oeil d'une plaque. De plus, un deuxième spectrographe à aimants-permanents, donnant un champ constant et intense dans un entrefer pouvant atteindre 7 cm, va permettre, avec une luminosité bien supérieure, et des améliorations au spectrographe et aux diaphragmes, de diminuer probablement le fond défini dans ce travail d'un facteur 10, et d'atteindre ainsi des niveaux d'intensité 10^{-7} ou quelques 10^{-8}.

De nombreux problèmes, qui n'ont pu être résolus jusqu'à ce jour, auraient nécessité le traitement par séparation isotopique de matière première très active. Un projet de séparateur, actuellement à l'étude, doit permettre d'étendre l'utilisation des appareils actuels pour la spectrographie α d'un plus grand nombre de radioéléments naturels ou artificiels.

BIBLIOGRAPHIE

(A1) ASARO F. et PERLMAN I. - Phys. Rev. 88 (1952) 129

(A2) ASARO F. - Thèse UCRL 2180 (1952)

(A3) ALBURGER D.E. et PRYCE M.H.L. Phys. Rev. 92 (1953) 1257 et Phys. Rev. 95 (1954) 1482

(A4) ALBURGER D.E. et FRIEDLANDER - Phys. Rev. 82 (1951) 977

(B1) BASTIN G. - Journal des Recherches du C.N.R.S 36 (1956) 301

(B2) BOHR A., FRÖMAN P.O. et MOTTELSON B. - Dan. Mat. Fys. Medd. 29 N 10 (1955)

(B3) BASTIN-SCOFFIER G. et WALEN R.J. - Phys. et Rad. 19 (1958) 527

(B4) BASTIN-SCOFFIER G. et SANT'ANA DIONISIO J. - C.R. 236 (1953) 1016

(B5) BASTIN-SCOFFIER G. et WALEN R.J. - C.R. 247 (1958) 2333

(B6) BRODA E. et FEATHER N. - Proc. Roy. Soc. A 191 (1947) 20

(B7) BOUISSIERES G. et C. FERRADINI - Anal. Chim. Acta 4 (1950) 610

(C1) CHASMAN R.R. et RASMUSSEN J.O. - Phys. Rev. 115 (1959) 5

(C2) COTTON E. - Ann. Phys. 6 (1951) 481

(D1) DAVYDOV A.S. et FILIPOV G.F. - Nucl. Phys. 8 (1958) 237 et Nucl. Phys. 10 (1959) 654

(D2) DEMICHELIS F. et RADICATI L.A. - Nuovo Cimento 3 (1956) 152

(D3) DE BENEDETTI S. et MINTON G.H. - Phys. Rev. 85 (1952) 944

(F1) FOUCHER R. - C.R. 249 (1959) 2310

(F2) FINK R.W., WARREN G.W., ROBINSON B.L. et EDWARDS R.R. - Bull. Amer. Phys. Soc. Ser. II 1 (1956) 171

(F3) FRÖMAN P.O. - Kgl. Danske Vid. Selsk. Mat. Fys. Skr. 1 N 3 (1957)

(F4) FRILLEY M. et VALADARES M. - J. Phys. et Rad. 18 (1957) 468

(G1) GAMOW et CRITCHFIELD - Theory of Atomic Nucleus, Oxford, (1949)

(G2) GALLAGHER C.J. et RASMUSSEN J.O. - J. Inorg. Nucl. Chem. 3 (1957) 333

(G3) GOLENETSKII S.V., RUSINOV I.I. et Yu FILIMONOV I. - J. Explt. Theor. Fiz. S.S.S.R. 37 (1959) 560

(G4) GIRGIS R.K. et VAN LIESHOUT - Nucl. Phys. 12 (1959) 672

(H1) HAÏSSINSKY M. - Electroch. des substances radioactives Hermann, Paris (1946)

(H2) HAÏSSINSKY M. - La chimie nucléaire et ses applications Ch. XI, XV et XXI Masson Paris (1957)

(H3) HAHN O. et MEITNER L. - Phys. Zeit. 10 (1909) 741

(H4) HARBOTTLE G., Mc KEOWN M. et SCHARFF GOLDHABER G. - Phys. Rev. 103 (1956) 1776

(H5) HAYWARD R.W., HOPPES D.D. et MANN W.B. - J. Res. Nat. Bur. of Stand. 54 (1955) 47

(H6) HAÏSSINSKY M., ROSENBLUM S. et WALEN - J. Phys. et Rad. 10 (1939) 355

(H7) HUGHES D.J. et PALEVSKY H. - Phys. Rev. 92 (1953) 1206

(H8) HOLM G.B., BURWELL J.R. et MILLER D.W. - Phys. Rev. 118 (1960) 1247

(H9) HORTON J.W. - Phys. Rev. 101 (1956) 717

(K1) ARLIK B. et BERNERT T. - Naturwiss 31 (1943) 298

(K2) KAPLAN I. - Phys. Rev. 81 (1951) 962

(K3) KEARSLEY M.J. - Nucl. Phys. 4 (1957) 157

(K4) KHARITONOV Yu. I. - Izv. Akad. Nauk. S.S.S.R. Ser. Fiz. 23 (1959) 1520

(K5) KRISYOUK E.M., SERGEIEV A.G., LATYSHEV G.D. et VOROBYOV V.D. - Nucl. Phys. 4 (1957) 579

(L1) EVY H.B. et PERLMAN I. - Phys. Rev. 94 (1954) 152

(L2) LEE WHITING G.E. - Phys. Rev. 97 (1955) 463

(M1) ARTY C. - Nucl. Phys. 1 (1956) 85

(M2) MADANSKY L. et RASETTI F. - Phys. Rev. 102 (1956) 461

(M3) MLADJENOVIC M. et SLÄTIS H. - Ark. Fys. 8 (1954) 65

(M4) MICHEL H.V. - UCRL 9229 (1960)

(M5) MAYER M.G. et JENSEN J.D.H. - Elementary Theory of Nuclear Shell Structure J. Wiley N. Y. (1951)

(M6) MICHALOWICZ A. - Ann. Phys. 2 (1957) 116

(N1) ILSSON S.G. - Dan. Mat. Fys. Medd. 29 N 16 (1955)

(N2) NIELSEN K.O., NIELSEN O.B. et WAGGONER M.A. - Nucl. Phys. 2 (1956) 476

(N2bis) NOVAKOV T., HULTBERG S. et ANDERSON B. - Ark. Fys. 13 (1958) 117

(N3) NEWBY N. et KONOPINSKI E.J. - Phys. Rev. 115 (1959) 434

(N4) NIELSEN O.B. - Kgl. Danske Vid. Selsk. Mat. Fys. Medd. 30 N 11 (1955)

(P1) PRUGNE P., BLANDIN-VIAL J., GODIN A., LACHAUGUETTE G., LEGER P. - J. Phys. et Rad. 16 (1955) 730

(P2) PRESTON M.A. - Phys. Rev. 71 (1947) 865

(P3) PERLMAN I. et RASMUSSEN J.O. - UCRL 3424 (1956)

(P4) PERLMAN I., GHIORSO A. et SEABORG G. - Phys. Rev. 77 (1950) 26

(P5) PERLMAN I. et YPSILANTIS I. - Phys. Rev. 79 (1950) 30

(P6) PRYCE M.H.L. - Proc. Phys. Soc. A 65 (1952) 772

(R1) ROSENBLUM S. - C.R. 188 (1929) 1401

(R2) ROSENBLUM S. et TSAÏ B. - Journ. des Recherches du C.N.R.S. N° hors série 16 (1946)

(R3) RYTZ A. - Journ. des Recherches du C.N.R.S. 4 (1953) 254

(R4) RYTZ A. - C.R. 250 (1960) 3156

(R5) ROSENBLUM S., VALADARES M. et GOLDSCHMIDT B. - C.R. 230 (1950) 638

(R6) ROSENBLUM S., VALADARES M., PEREY M. et VIAL J. - C.R. 229 (1949) 1009

(R6bis) ROSENBLUM S., VALADARES M., BLANDIN-VIAL J. et BERNAS R. - C.R. 238 (1954) 496

(R7) ROSENBLUM S., GUILLOT M. et BASTIN-SCOFFIER G. - C.R. 229 (1949) 108

(R8) ROSENBLUM S. - Cah. de Phys. 9 (1955) 38

(R9) ROSENBLUM S. - Ann. Phys. 10 (1928) 408

(R10) ROSENBLUM S. - C.R. 195 (1932) 317

(R11) ROSE M.E. - Internal Conversion Coefficients North-Holland Publ. Comp. Amsterdam (1958)

(R12) RIOU M. - J. Phys. et Rad. 14 (1953) 785

(R13) RUTHERFORD (LORD), WYNN WILLIAMS C.E., LEWIS W.B. et BOWDEN B.V. - Proc. Roy. Soc. A 139 (1933) 617

(R14) RASMUSSEN J.O. - Rev. Mod. Phys. 30 (1958) 424

(S1) TAHEL O. - C.R. 194 (1932) 608

(S2) STEPHENS F.S. Jr - Thèse UCRL 2970 (1955)

(S3) STEPHENS F.S. Jr, ASARO F. et PERLMAN I. - Phys. Rev. 119 (1960) 796

(S3bis) SLIV L.A. et BAND I.M. - Tables de coeff. de conversion, Moscou (1956-1958)

(S4) SHARFF GOLDHABER G. - Phys. Rev. 103 L (1956) 837

(S5) STEPHENS F.S. Jr, ASARO F. et PERLMAN I. - Phys. Rev. 100 (1955) 1543 et Phys. Rev. 105 (1957) 1091

(S6) STANNERS W. et ROSS M.A.S. - Proc. Phys. Soc. A 69 (1956) 837

(T1) TOBAILEM J. - J. Phys. et Rad. 16 (1955) 235

(T2) TOLHOEK H.A. et BRUSSAARD P.J. - Physica 21 (1955) 449

(T3) TRUE W.W. et FORD K.W. - Phys. Rev. 109 (1958) 1675

(V1) VICTOR C., TEILLAC J., FALK VAIRANT P. et BOUISSIERES G. - J. Phys. et Rad. 13 (1952) 565

(W1) WALEN R.J. - Nucl. Instr. 1 (1957) 242

(W2) WEXLER S. - Rev. Mod. Phys. 30 (1958) 402

(W3) WHITE F.A., ROURKE F.M., SHEFFIELD J.C., SCHUMAN R.P. et HUIZENGA J.R. - Phys. Rev. 109 (1958) 437

(W4) WALEN R.J. et BASTIN G. - Congrès Int. de Phys. Nucl. Paris (1958) 910

(W5) WILETS L. et JEAN M. - Phys. Rev. 102 (1956) 788

(W6) WALEN R.J. - J. Phys. et Rad. 10 (1949) 95

(W7) WALEN R.J. et BASTIN-SCOFFIER - Nucl. Phys. 16 (1960) 246

(W8) WINSLOW G.H. - Phys. Rev. 96 (1954) 1032

(W9) WALEN R.J. et BASTIN-SCOFFIER G. - J. Phys. et Rad. 20 (1959) 589

(W10) WALEN R.J. et BASTIN-SCOFFIER G. - C.R. 245 (1957) 676

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

STRUCTURE CRISTALLINE PAR DIFFRACTION NEUTRONIQUE

Vu et approuvé :
Paris, le 21 Avril 1961
Le Doyen de la Faculté des Sciences
J. PÉRÈS

Vu et permis d'imprimer :
Le Recteur de l'Académie de Paris
Jean SARRAILH